

Untersuchungen zum epitaktischen
Wachstum von 3C-SiC bei Verwendung
einer C₆₀-Kohlenstoffquelle

Inaugural-Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Augsburg

vorgelegt von
Sascha Schreiber

Augsburg, Januar 2006

Erstgutachter: Prof. Dr. Bernd Stritzker

Zweitgutachter: Prof. Dr. Armin Reller

Tag der mündlichen Prüfung: 11. April 2006

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Siliziumkarbid	5
2.1	Kristallstruktur	5
2.2	Eigenschaften und Anwendungspotential	9
2.3	Herstellung von SiC-Volumenkristallen	11
2.4	Heteroepitaktische 3C-SiC-Schichten	15
3	Synthese von 3C-SiC-Schichten durch C₆₀-Deposition	17
3.1	Fullerene	17
3.1.1	Grundstruktur der Fullerene	17
3.1.2	Das C ₆₀ -Molekül	18
3.2	Wechselwirkung von C ₆₀ -Molekülen mit Si-Oberflächen	21
3.3	Vorarbeiten zum 3C-SiC-Wachstum auf Si-Substraten	22
3.4	Anlage zur Synthese von 3C-SiC-Schichten	26
3.5	Ablauf des Depositionsprozesses	28
4	Analytische Verfahren	31
4.1	Rutherford-Rückstreupektrometrie	31
4.2	Elastische Rückstreudetektionsanalyse	33
4.3	Röntgendiffraktometrie	36
4.3.1	Beugungsbedingung	36
4.3.2	Messung in Bragg-Brentano-Geometrie	38
4.3.3	Messung in Parallelstrahlgeometrie	41
4.4	RHEED-Untersuchungen	42
4.4.1	Entstehung eines RHEED-Beugungsbildes	43
4.4.2	Streutheorie	48
4.5	Rasterelektronenmikroskopie	50
4.6	Rasterkraftmikroskopie	51

4.7	Transmissionselektronenmikroskopie	53
5	Heteroepitaxie von 3C-SiC-Schichten auf Si(001)	57
5.1	Anfangsstadium des 3C-SiC Wachstums	57
5.2	Hohlraumfreies 3C-SiC Schichtwachstum	59
5.3	Entwicklung von Struktur und Textur über die Schichtdicke	79
6	Homoepitaxie auf 3C-SiC(001)-Pseudosubstraten	83
6.1	3C-SiC-Pseudosubstrate	83
6.1.1	Herstellung durch Ionenstrahlsynthese	83
6.1.2	Eigenschaften der verwendeten Substrate	84
6.2	Einfluss der Oberflächenbeschaffenheit	87
6.3	Einfluss des Depositionsratenverhältnisses	106
6.4	Wachstum unter Si-reichen Depositionsbedingungen	117
7	Zusammenfassung	125
	Literaturverzeichnis	129
	Anhang	141
A.1	SiC-Gitterkonstanten	141
A.2	Reinigung im Wasserstoffplasma	141

Wissenschaft kann
die letzten Rätsel der Natur nicht lösen.
Sie kann es deswegen nicht, weil wir selbst
ein Teil der Natur und damit auch ein Teil
des Rätsels sind, das wir lösen wollen.

Max Planck

Kapitel 1

Einleitung

Siliziumkarbid (SiC) zählt zu den wenigen Verbindungen, welche die Eigenschaft besitzen, in einer Vielzahl verschiedener Kristallstrukturen zu existieren. Bis heute sind mehr als 200 verschiedene sog. SiC-Polytypen bekannt. Neben einer großen mechanischen Härte und einer hervorragenden chemischen Resistenz zeichnen sie sich durch bemerkenswerte elektronische Eigenschaften aus. Letztere machen SiC insbesondere als Halbleitermaterial für Hochleistungs-, Hochfrequenz- und Hochtemperaturbauelemente interessant.

Bis heute sind jedoch nur wenige elektronische Bauteile auf SiC-Basis kommerziell erhältlich. Der Grund hierfür ist die bisher noch mangelnde Verfügbarkeit an SiC-Wafern mit ausreichender kristalliner Qualität und Größe. Zur Herstellung von SiC-Wafer für die Halbleiterindustrie dienen bisher ausschließlich SiC-Volumenkristalle, die über das sog. Modifizierte Lely-Verfahren gewachsen wurden. Die verfügbaren Polytypen beschränken sich dabei auf das hexagonale 4H- und 6H-SiC. Das größte Problem hinsichtlich der kristallinen Qualität stellen die sog. Micropipes dar. Es handelt sich dabei um hohle Röhren mit einem Durchmesser von bis zu einigen Mikrometern, die sich durch den gesamten Kristall bis zur Oberfläche hin erstrecken können. Durch angestrengte Forschungsarbeiten konnte die Micropipe-Dichte in den letzten Jahren kontinuierlich reduziert werden. In kommerziellen Standard-Substraten beträgt sie derzeit noch 31-100 Micropipes/cm² [1].

Unter der Vielzahl der bekannten SiC-Polytypen ist das 3C-SiC von besonderem technologischen Interesse. Als einzige SiC-Modifikation mit kubischer Kristallstruktur zeichnet es sich durch Isotropie seiner elektrischen Eigenschaften aus. Ferner verfügt es unter den SiC-Polytypen über die theoretisch höchste Elektronenbeweglichkeit. Die Herstellung von 3C-SiC-Volumenkristallen über das Modifizierte Lely-Verfahren ist jedoch nur in sehr eingeschränktem Maße möglich. Aus diesem Grund ist die Synthese des kubischen Polytyps durch heteroepitaktisches Schichtwachstum

Gegenstand intensiver Forschungsarbeiten. Als Substratmaterial wird Silizium favorisiert, da es kostengünstig, großflächig und mit hoher kristalliner Qualität verfügbar ist. Darüber hinaus wäre durch diese Materialkombination eine hohe Kompatibilität zur Si-Mikroelektronik gegeben.

In den vergangenen Jahren wurden verschiedene Verfahren zum heteroepitaktischen Wachstum von 3C-SiC auf Si entwickelt. Die für die Massenproduktion von 3C-SiC-Bauelementen erforderliche Schichtqualität konnte bislang jedoch noch nicht erreicht werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden epitaktische 3C-SiC-Schichten auf Si(001)-Substraten unter Verwendung eines relativ jungen Verfahrens gewachsen, das erstmals von Hamza et al. demonstriert wurde [2]. Hierbei werden unter Hochvakuumbedingungen C_{60} -Fullerenmoleküle auf ein Si-Substrat aufgedampft, das eine Temperatur oberhalb 810°C aufweist. Die auftreffenden C_{60} -Moleküle fragmentieren in diesem Temperaturbereich, so dass die freigesetzten Kohlenstoffatome mit Siliziumatomen zu SiC reagieren können. Wird, wie es in vorangegangenen Arbeiten der Fall war, während des 3C-SiC-Schichtwachstums kein Si aus der Gasphase angeboten oder ist das Si:C-Verhältnis bezüglich der Aufdampfraten kleiner eins, so wird das zur SiC-Synthese fehlende Si aus dem Substrat entnommen. Die Folge sind Hohlräume im Siliziumsubstrat unterhalb der gewachsenen 3C-SiC-Schicht. Hinsichtlich technologischer Anwendungen ist eine derartige Hohlraumbildung jedoch unbedingt zu vermeiden.

Eine der Zielsetzungen dieser Arbeit war es, hohlraumfreies epitaktisches 3C-SiC-Schichtwachstum auf Si(001)-Substraten bei Verwendung einer C_{60} -Kohlenstoffquelle zu erreichen. Um die hierfür notwendigen experimentellen Bedingungen zu schaffen, wurde eine Ultrahochvakuumanlage konzipiert und aufgebaut. Eine RHEED-Analytik wurde in die Apparatur integriert, um erstmals das Schichtwachstum in-situ untersuchen zu können.

Unter den geschaffenen experimentellen Voraussetzungen konnte als weiteres Ziel dieser Arbeit erstmals homoepitaktisches Wachstum auf ionenstrahlsynthetisierten 3C-SiC-Pseudosubstraten unter Verwendung einer C_{60} -Kohlenstoffquelle demonstriert werden. Die Eigenschaften der 3C-SiC-Schichten wurden in Abhängigkeit von der Oberflächenbeschaffenheit der verwendeten Substrate und des Depositionsratenverhältnisses von C_{60} und Si untersucht. Besonderes Augenmerk wurde dabei auf die Schichtabscheidung unter siliziumreichen Bedingungen gelegt.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in folgende Abschnitte:

Das anschließende zweite Kapitel befasst sich mit dem Halbleitermaterial Siliziumkarbid. Die SiC-Kristallstruktur sowie die wichtigsten physikalischen Eigenschaften werden kurz dargestellt. Darüber hinaus wird ein Überblick über die technologisch bedeutsamsten Verfahren zur Synthese von SiC-Volumenkristallen und heteroepitaktischen 3C-SiC-Schichten gegeben.

Das dritte Kapitel widmet sich der SiC-Schichtabscheidung unter Verwendung einer C_{60} -Kohlenstoffquelle. Zunächst wird das Modell des Schichtwachstums kurz erläutert. Danach folgt eine Beschreibung des verwendeten experimentellen Aufbaus und des prinzipiellen Ablaufs des Depositionsprozesses.

In Kapitel 4 werden die zur Schichtcharakterisierung angewandten Analysemethoden dargestellt. Besonderes Gewicht liegt dabei auf SiC-spezifischen Besonderheiten.

Die Ergebnisse zur epitaktischen Schichtabscheidung auf Si(001)-Substraten und ionenstrahlsynthetisierten 3C-SiC(001)-Pseudosubstraten werden schließlich in Kapitel 5 und 6 diskutiert.

Kapitel 2

Siliziumkarbid

2.1 Kristallstruktur

Besitzt eine chemische Substanz die Möglichkeit, in mehr als einer Struktur zu kristallisieren, so spricht man von Polymorphie [3]. Die chemischen und physikalischen Eigenschaften ihrer Polymorphe können dabei sehr verschieden sein. Ein Beispiel hierfür ist Kohlenstoff, der sowohl als Graphit als auch als Diamant vorliegen kann. Als Polytypie bezeichnet man die Einschränkung der Polymorphie auf eine Kristallrichtung [4]. Dabei unterscheiden sich die Polytypen einer Substanz durch die unterschiedliche periodische Stapelfolge bestimmter Kristallebenen, die als Grundbaustein des Gitters dienen.

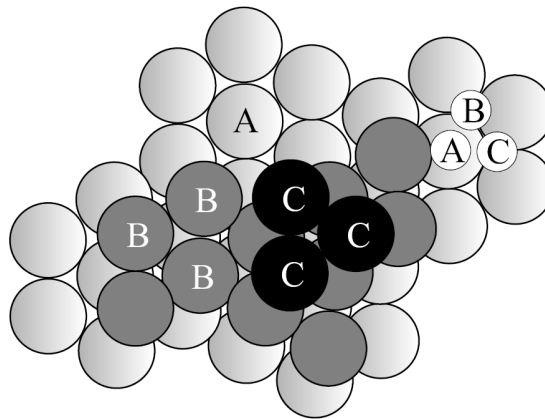


Abb. 2.1: Dichteste Kugelpackung mit Stapelplätzen A, B und C, nach [5]

Die Polytypie lässt sich anschaulich mit dem Modell der dichtesten Kugelpackung beschreiben. Für eine Schichtfolge dicht gepackter Kugeln gibt es insgesamt drei verschiedene Stapelplätze, die in Abb. 2.1 mit A, B und C bezeichnet werden. Durch periodisches Aufstapeln dieser Schichten wird das Kristallgitter aufgebaut, wobei die

verwendete Stapelfolge den entstehenden Polytyp charakterisiert.

Siliziumkarbid (SiC) gehört zu den wenigen Verbindungen, die in einer Vielzahl stöchiometrisch identischer, jedoch kristallographisch unterschiedlicher Polytypen kristallisiert. Mehr als 200 verschiedene SiC-Polytypen sind bis heute beobachtet worden. Darunter befindet sich ein einziger mit kubischer Struktur, alle anderen besitzen ein hexagonales oder rhomboedrisches Gitter.

Die Kugeln in Abb. 2.1 sind im SiC durch Si-C-Dimere realisiert, deren Si- bzw. C-Atome zu der nächsten Stapelschicht jeweils tetraedrisch koordiniert sind. Die Si-Atome der einen Lage und die C-Atome der nächsten Lage definieren eine sog. Si-C-Doppellage. Durch unterschiedliche periodische Stapelung dieser Doppellagen erhält man verschiedene SiC-Polytypen.

Die Bindung zwischen den Si- und C-Atomen ist nahezu vollständig kovalent mit einem ionischen Anteil von etwa 12%. Die Bindungslänge beträgt 1,889 Å. Abb. 2.2 zeigt beispielhaft die Stapelfolge der wichtigsten SiC-Polytypen.

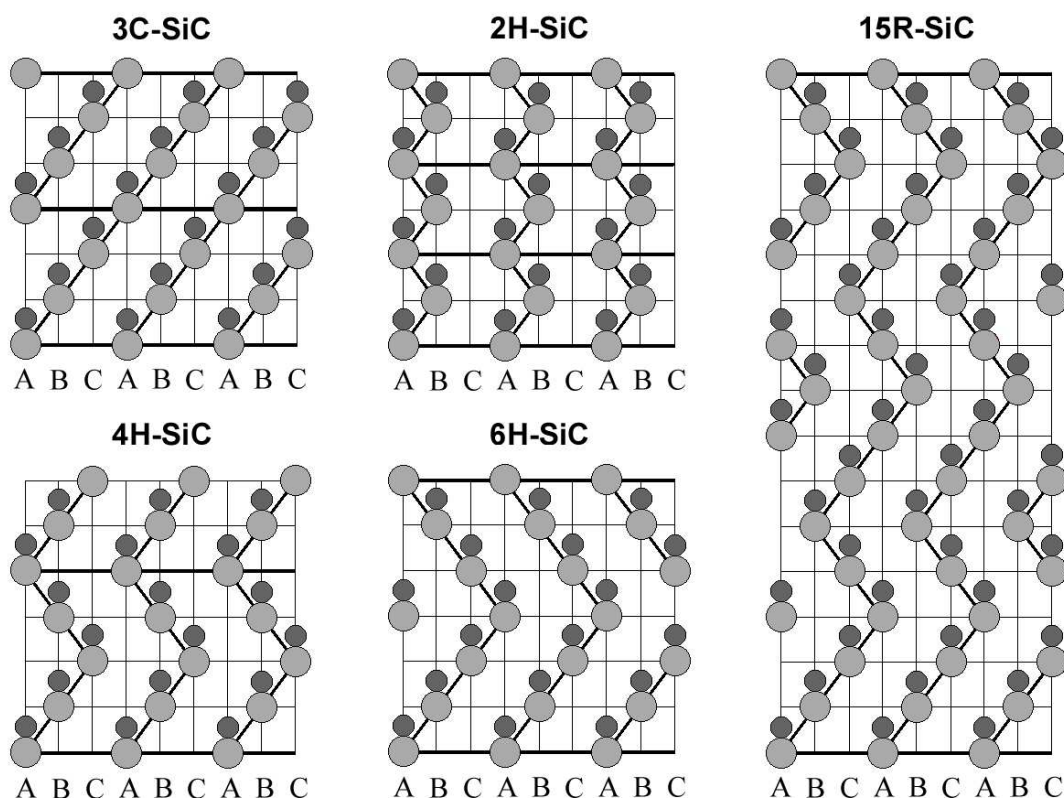


Abb. 2.2: Stapelfolge der wichtigsten SiC-Polytypen: Position der Siliziumatome (groß) und Kohlenstoffatome (klein) in der $(11\bar{2}0)$ -Ebene des hexagonalen Kristallsystems

Zur Beschreibung der Siliziumkarbid-Polytypen existieren unterschiedliche Notationen. Der kubische Polytyp wird auch als β -SiC bezeichnet, während alle anderen

Polytypen unter α -SiC zusammengefasst werden. Die gebräuchlichste Nomenklatur, die auch in dieser Arbeit verwendet wird, geht auf Ramsdell [6] zurück. Hierbei besteht die Bezeichnung eines Polytyps aus einer Zahl, die die Anzahl der Si-C-Doppellagen einer Stapelperiode angibt, und einem Buchstaben, der den Typ der Kristallstruktur bezeichnet (C für kubisch, H für hexagonal, R für rhomboedrisch).

Polytyp	Stapelfolge	Grad der Hexagonalität H
3C-SiC	ABC	0 %
2H-SiC	AB	100 %
4H-SiC	ABCB	50 %
6H-SiC	ABCACB	33 %
15R-SiC	ABCACBCABACBCB	40 %

Tab. 2.1: Stapelfolge der Si-C-Doppellagen und Grad der Hexagonalität H für die wichtigsten SiC-Polytypen

Wie in Abb. 2.3 dargestellt, existieren zwei grundlegende Stapelfolgen von Si-C-Doppellagen. Stimmt die Projektion der Siliziumatome aus der dritten Si-Ebene mit der Position aus der ersten Ebene überein, so ergibt sich die hexagonale Wurtzit-Struktur. Besitzen hingegen die Siliziumatome dreier aufeinander folgender Si-Ebenen alle verschiedene Positionen, resultiert die kubische Zinkblende-Struktur.

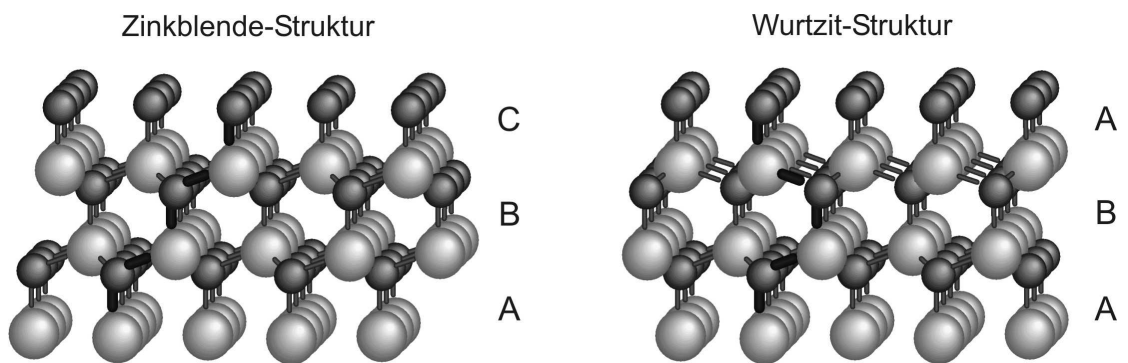


Abb. 2.3: Grundlegende Stapeltypen von Si-C-Doppellagen; Siliziumatome (groß), Kohlenstoffatome (klein)

Der Grad der Hexagonalität H eines Polytyps ist definiert als

$$H = \frac{h}{h + c} \quad (2.1)$$

wobei h die Anzahl der Stapelfolgen mit Wurtzit-Struktur und c die Anzahl der Stapelfolgen mit Zinkblende-Struktur bezeichnet. Extremfälle sind das 3C-SiC mit reiner Zinkblende-Struktur und das 2H-SiC mit reiner Wurtzit-Struktur.

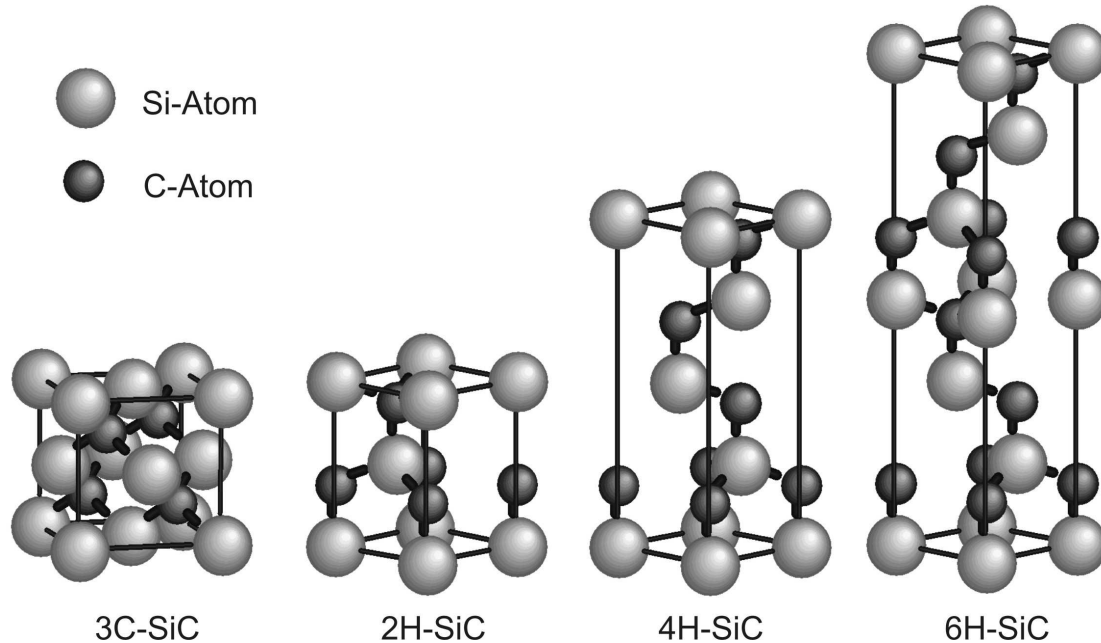


Abb. 2.4: Einheitszellen der wichtigsten SiC-Polytypen: 3C-SiC mit kubischer Einheitszelle und 2H-SiC, 4H-SiC und 6H-SiC mit hexagonaler Einheitszelle. Die Gitterkonstanten sind der Tab. 7.1 im Anhang zu entnehmen.

Bis heute ist die Ursache der Polytypie bei SiC noch weitgehend ungeklärt. Im Laufe der Zeit wurden zu dieser Thematik verschiedene Modellansätze entwickelt. Eine vollständige Erklärung vermag jedoch bis heute keine der vorgeschlagenen Theorien zu leisten.

Franks Theorie [7] basiert auf dem Auftreten von Schraubenversetzungen während des SiC-Kristallwachstums. Diese Defekte können zur Ausbildung von Wachstumsspiralen mit fester Stufenhöhe führen. Ist der Burgersvektor der Schraubenversetzung genauso groß bzw. ein ganzzahliges Vielfaches der Elementarzelle des vorliegenden Polytyps, so wird letztere in der Wachstumsspirale periodisch reproduziert. Der betreffende Polytyp wächst folglich stabil weiter. Entspricht der Burgersvektor keinem ganzzahligen Vielfachen der Elementarzelle, so werden periodisch Stapelfehler eingebaut, was zum Wachstum eines neuen Polytyps führt. Franks Theorie zur SiC-Polytypie ist in beschriebener Weise auf die lokale Umgebung von Schraubenversetzungen beschränkt. Das Auftreten großflächiger Bereiche eines Polytyps kann mit dieser Theorie nicht hinreichend erklärt werden.

Ein thermodynamisches Modell zur SiC-Polytypie wurde von Jagodzinski [8] vorge-

schlagen. Darin ist das 3C-SiC die stabilste Modifikation. Alle anderen SiC-Polytypen werden durch das Verschieben von Si-C-Doppellagen gebildet, verursacht durch Stufenversetzungen senkrecht zur [0001]-Richtung. Aktuellere Arbeiten stützen sich auf das sog. Axial Next-Nearest Neighbour Ising (ANNNI) Modell [9–11]. Grundlage hierfür ist das Ising-Modell [12] der statistischen Physik.

2.2 Eigenschaften und Anwendungspotential

Aufgrund herausragender physikalischer Eigenschaften besteht großes technologisches Interesse an Siliziumkarbid. Insbesondere die elektrischen Eigenschaften machen es als Halbleitermaterial für elektronische Anwendungen interessant.

Tabelle 2.2 zeigt einen Vergleich der technologisch bedeutsamsten SiC-Polytypen mit den konventionell eingesetzten Halbleitern Si und GaAs [13, 14], die heute den überwiegenden Anteil elektronischer Systeme ausmachen.

Eigenschaften	Si	GaAs	4H-SiC	6H-SiC	3C-SiC
Bandlücke [eV]	1,12	1,42	3,26	3,02	2,39
Int. Ladungsträgerkonz. [cm^{-3}]	10^{10}	$1,8 \cdot 10^6$	$\sim 10^{-7}$	$\sim 10^{-5}$	~ 10
Durchbruchfeldstärke ^c [MV/cm]	0,6	0,6	3,0	3,2	$> 1,5$
Sättigungsdriftgeschw. [10^7cm/s]	1,0	1,2	2,0	2,0	2,5
Elektronenbewegl. ^d [cm^2/Vs]	1200	6500	800 ^a 800 ^b	60 ^a 400 ^b	750
therm. Leitfähigkeit [W/cmK]	1,5	0,5	3 - 5	3 - 5	3 - 5

^a parallel zur c-Achse, ^b senkrecht zur c-Achse

^c $N_D=10^{17} \text{ cm}^{-3}$, ^d $N_D=10^{16} \text{ cm}^{-3}$

Tab. 2.2: Vergleich der wichtigsten physikalischen Eigenschaften ausgewählter SiC-Polytypen, Si und GaAs (alle Daten bei 300 K, aus [13, 14])

Die wichtigste elektronische Eigenschaft von SiC ist die große indirekte Bandlücke, welche je nach Polytyp bzw. dessen Grad an Hexagonalität H im Bereich von 2,39 eV (für 3C-SiC) bis 3,33 eV (für 2H-SiC) variiert. Sie erlaubt es, SiC-Halbleiterbauelemente bei wesentlich höheren Temperaturen zu betreiben als dies bei konventionellen Bauteilen möglich wäre. Es konnten bereits MOSFETs bis 650°C [15] und

MESFETs bis 500°C [16] erfolgreich demonstriert werden. Die Größe der Bandlücke macht SiC auch für den Einsatz in der Optoelektronik interessant, da sich die Möglichkeit der Emission und Detektion kurzwelligen Lichtes bietet. Als eine der ersten elektronischen Anwendungen von SiC kamen 1977 blaue Leuchtdioden auf den Markt [17]. Später folgten UV-Photodetektoren, deren Nachweisbreite von 200 nm - 400 nm im Vergleich zu Si-UV-Detektoren um den Faktor 6 kleiner ist. Darüber hinaus können SiC-UV-Detektoren auch bei hohen Temperaturen bis zu 400°C problemlos eingesetzt werden [18].

Eine weitere wichtige Eigenschaft von SiC ist die hohe elektrische Durchbruchfeldstärke, die elektronische Anwendungen im Bereich von hohen Spannungen und Strömen gestattet. SiC-Schottky-Dioden mit Betriebsparametern von 600 - 1200 V und 1 - 20 A sind bereits kommerziell erhältlich [19]. Ferner ermöglicht die im Vergleich zu Si und GaAs wesentlich größere Durchbruchfeldstärke eine deutlich höhere Integrationsdichte für elektronische Bauteile auf SiC-Basis.

Die Elektronenbeweglichkeit bei Raumtemperatur ist bei SiC im Vergleich zu Si und GaAs eher gering, dagegen ist die Sättigungselektronendriftgeschwindigkeit bei hohen Feldern etwa doppelt so hoch. Damit lassen sich bei elektronischen Bauteilen wesentlich höhere Grenzfrequenzen erzielen. Für SiC-MESFETs konnte bereits eine Frequenz von bis zu 42 GHz im Labor realisiert werden [20].

Tabelle 2.2 zeigt ferner, dass es sich bei SiC um einen sehr guten thermischen Leiter handelt. Damit bietet sich SiC ebenfalls zur Herstellung von leistungselektronischen Bauelementen an, da die aus der Verlustleistung resultierende Wärme effizient abgeführt werden kann.

Vorteilhaft für Halbleiteranwendungen ist auch, dass SiC sowohl p- als auch n-dotierbar ist. Der bevorzugte Donator ist Stickstoff, als Akzeptor werden meist Aluminium oder Bor verwendet [13]. Da eine Diffusion der genannten Dotierungselemente in SiC aufgrund der geringen Diffusionskoeffizienten kaum stattfindet, werden zur SiC-Dotierung zwei verschiedene Verfahren eingesetzt. Zum einen kann das SiC bereits während des Kristallwachstums in-situ dotiert werden, zum anderen ist auch die ex-situ Dotierung mittels Ionenimplantation nach der SiC-Synthese möglich [13]. Bei der in-situ Dotierung werden die Dotierungselemente in gewünschter Konzentration zusätzlich neben Silizium und Kohlenstoff aus der Gasphase angeboten. Stickstoff zur n-Dotierung wird dabei bevorzugt auf Kohlenstoffplätzen, Aluminium bzw. Bor zur p-Dotierung überwiegend auf Siliziumplätzen in das SiC-Kristallgitter eingebaut [13, 21, 22]. Zur lateral selektiven Dotierung können die Dotierungselemente auch ex-situ mittels Ionenimplantation in das Kristallgitter eingebracht werden. Um die dabei entstehenden Strahlenschäden im SiC-Gitter zu minimieren, wird die Im-

plantation bei relativ hohen Substrattemperaturen von 500 bis 800°C durchgeführt. Anschließend folgt ein Temperschritt in Argonatmosphäre oberhalb 1000°C, um Defekte im Kristallgitter auszuheilen und die eingebrachten Störstellen elektrisch zu aktivieren [13, 23].

SiC bildet sowohl bei feuchter als auch bei trockener Oxidation eine dichte SiO₂-Oberfläche. Die Oxidationsrate hängt dabei vom SiC-Polytyp, von der Oberflächen-terminierung, von der Dotierungsdichte, von der Oberflächenrauigkeit und der Kristallqualität ab. In der Halbleitertechnologie dienen diese SiO₂-Schichten auf SiC als Maske für Ionenimplantation und Trockenätzprozesse, als Gate-Isolation von Feldeffektbauelementen und zur Oberflächenpassivierung [24].

Aufgrund der starken kovalenten Bindungen zwischen den Silizium- und Kohlenstoffatomen ist SiC extrem hart. Es dient deshalb neben Korund als Hauptrohstoff zur Herstellung von keramisch- oder kunststoffgebundenen Schleifkörpern, Schleifpapieren und -leinen [25]. Ferner zeichnet sich SiC durch eine hohe chemische Stabilität aus. Bei Raumtemperatur ist es inert gegenüber jeder bekannten Säure [26]. Die Kombination aus großer Härte, hoher chemischer Stabilität und ausgezeichneter Verschleißfestigkeit macht SiC auch für Hartstoffbeschichtungen sehr interessant. Nicht zuletzt sei die Biokompatibilität von SiC erwähnt. Die freien Ladungsträger in Metallen bauen in medizinischen Implantaten schwache elektrische Felder auf, die die Wasserstoffbrückenbindungen in Biomakromolekülen zerstören können. Metallische Materialien können deshalb in Blutgefäßen zur Blutgerinnung führen. Bei Herzklappen und Koronarstents konnte diese Blutgerinnung durch eine SiC-Beschichtung vollständig verhindert werden [27, 28].

2.3 Herstellung von SiC-Volumenkristallen

Der überwiegende Anteil von Kristallen für technische Anwendungen wird heute mit Hilfe von Schmelz- und Lösungszüchtungsverfahren hergestellt. Eine theoretische Abschätzung von Tsvetkov et al. zeigt jedoch, dass stöchiometrisches Wachstum von SiC aus der Schmelze erst bei Drücken oberhalb 10⁵ bar und Temperaturen von mehr als 3200°C zu erwarten ist [29]. Da diese Wachstumsbedingungen technologisch kaum realisierbar sind, beschränkt sich die Möglichkeit zur Herstellung von SiC aus der flüssigen Phase auf die Lösungszüchtung. Aufgrund der geringen Wachstumsraten und der hohen Anforderungen an die Stabilität der Tiegelmaterialien konnte sich dieses Verfahren bei der SiC-Herstellung bislang jedoch nicht durchsetzen [30].

Das erste großtechnische Verfahren zur SiC-Herstellung wurde bereits 1892 von Ed-

wird G. Acheson vorgestellt [31, 32]. Eine Mischung aus Quarzsand (SiO_2) und Petrolkoks (C) wird in einem elektrischen Schmelzofen auf über 2000°C erhitzt.



Es bilden sich SiC-Kristalle von unterschiedlicher Form und einer maximalen Größe von einigen Zentimetern. Aufgrund ihrer sehr guten abrasiven Eigenschaften dienen sie als Rohstoff für die Schleifmittelindustrie. Für die Herstellung von Halbleiterbauelementen sind die beim sog. Acheson-Prozess entstehenden SiC-Kristalle nicht geeignet, da sie ein hohes Maß an Verunreinigungen und strukturellen Defekten aufweisen.

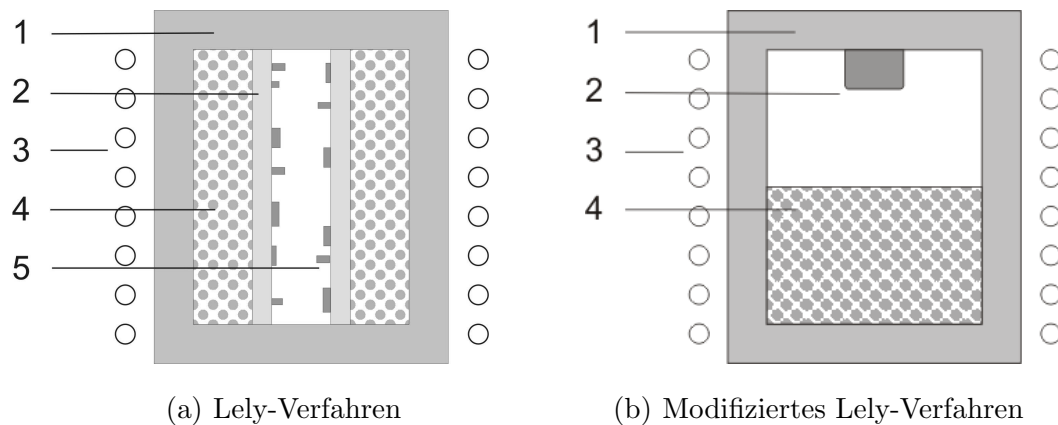


Abb. 2.5: (a) Lely-Verfahren nach [33]; 1: Tiegel aus Graphit, 2: poröser Graphit, 3: Spule für induktive Heizung, 4: SiC-Pulver, 5: SiC-Kristallplättchen (b) Modifiziertes Lely-Verfahren nach [34]; 1: Tiegel aus Graphit, 2: SiC-Keimkristall, 3: Spule für induktive Heizung, 4: SiC-Pulver

Die Herstellung von SiC-Kristallen mit deutlich verbesserter Qualität wurde durch das 1955 vorgestellte Lely-Verfahren ermöglicht [33]. Hierbei wird granulares SiC ringförmig zwischen der äußeren Tiegelwand und dem inneren Zylinder aus porösem Graphit eingefüllt (s. Abb. 2.5(a)). Danach wird die Anordnung unter inerter Argon- oder Heliumatmosphäre auf etwa 2600°C erhitzt. Das Quellmaterial sublimiert und die entstehenden gasförmigen Spezies diffundieren durch den porösen Graphit in den inneren Hohlraum. Mit Hilfe eines Temperaturgradienten zwischen der äußeren SiC-Füllung und dem inneren Bereich kommt es zur spontanen SiC-Nukleation auf der Innenseite des Zylinders aus porösem Graphit und zum nachfolgenden Wachstum von SiC-Kristallplättchen. Die Plättchen sind von hoher kristalliner Qualität, besitzen aber stark unterschiedliche Form und nur geringe Größe. Darüber hinaus existiert keinerlei Möglichkeit, die Art der entstehenden SiC-Polytypen zu kontrollieren [35].

Aus diesen Gründen eignen sich SiC-Kristalle, die durch das Lely-Verfahren synthetisiert wurden, nur sehr bedingt zur Herstellung von elektronischen Bauelementen.

Tairov und Tsvetkov entwickelten 1978 ein sog. modifiziertes Lely-Verfahren mit dem Ziel, die Geometrie und Orientierung des wachsenden SiC-Kristalls vorzugeben bzw. zu beeinflussen [36]. Der wesentliche Unterschied zum ursprünglichen Lely-Verfahren besteht darin, dass das SiC-Wachstum kontrolliert auf einem SiC-Keimkristall stattfindet. Dieses Züchtungsverfahren wird auch als *Seeded Sublimation Growth Method* oder *Physical Vapor Transport (PVT)* bezeichnet. Im Laufe der Zeit wurden verschiedene Varianten dieser Technik vorgestellt [34,37–39], um die kristalline Qualität der gewachsenen SiC-Volumenkristalle weiter zu verbessern. Im wesentlichen unterscheiden sie sich in der relativen Anordnung von Quellmaterial und Keimkristall.

Die Sublimationszüchtung in induktiv beheizten Reaktoren ist heute die Standardmethode zur kommerziellen Herstellung von 4H- und 6H-SiC Halbleitermaterial. Abb. 2.5(b) zeigt eine schematische Darstellung der gegenwärtig am häufigsten verwendeten Reaktorgeometrie nach [34]. Feinkörniges SiC-Pulver wird in einen zylindrischen Tiegel aus Graphit gefüllt, an dessen oberen Ende sich ein SiC-Keimkristall von hoher Qualität befindet. Hochreines SiC-Pulver als Quellmaterial erhält man beispielsweise mit der Van-Arkel-Methode [40] durch Pyrolyse. Als Keimkristall dienen nahezu defektfreie Lely-Plättchen oder Scheiben aus zuvor gezüchteten Kristallen. Unter inerter Gasatmosphäre, meist Argon, wird die Anordnung auf Temperaturen zwischen 2100°C und 2400°C erhitzt. Typische Drücke liegen im Bereich von 20 bis 100 mbar. Ein Temperaturgradient wird so angelegt, dass die Temperatur an der Kristalloberfläche typischerweise etwa 50°C bis 100°C geringer ist als die Temperatur an der Pulveroberfläche. Durch die Sublimation des Quellmaterials entstehen in erster Linie die gasförmigen Spezies Si, Si₂C und SiC₂ [41]. Über Diffusion und durch Advektion bedingte Konvektion werden sie im Temperaturgradienten zum Kristall transportiert. An dessen Oberfläche werden sie in einer Reihe von Prozessschritten adsorbiert, zerlegt und in das Kristallgitter eingebaut.

Die Wachstumsrate des SiC-Kristalls hängt dabei von der gewählten Temperatur des Quellmaterials und des Keimkristalls, deren Abstand, dem anliegenden Temperaturgradienten und dem Prozessdruck ab [42]. Typische Wachstumsraten liegen im Bereich von 0,5 bis 2,0 mm/h [43]. Untersuchungen haben gezeigt, dass neben der Defektdichte des Keimkristalls auch dessen Dotierung, Dicke, Orientierung und Oberflächenbeschaffenheit entscheidenden Einfluss auf die Qualität des gewachsenen Volumen kristalls haben [43]. Der Polytyp wird ebenfalls von einer Reihe von Parametern bestimmt. Hierzu zählen Orientierung, Temperatur und Polytyp des

Keimkristalls, sowie die Terminierung seiner Oberfläche (Si- oder C-Lage) [42].

Die Größe kommerziell erhältlicher SiC-Wafer wird durch die schwierige Prozessführung limitiert. Durch die stetige Weiterentwicklung der modifizierten Lely-Methode konnte der Waferdurchmesser in der Vergangenheit allerdings sukzessive erhöht werden. Der Marktführer *Cree Research* bietet inzwischen 6H-SiC als 50,8 mm Wafer und 4H-SiC als 50,8 mm und 76,2 mm Wafer an [1].

Der Vorteil der kontrollierten Kristallisation in der modifizierten Lely-Methode wird im Vergleich zum ursprünglichen Verfahren jedoch mit einer deutlichen Erhöhung der Defektdichte im gewachsenen SiC-Kristall erkauft.

Besonders sog. Micropipes stellen derzeit das größte Problem bei der Herstellung von SiC-Halbleiterbauelementen dar. Dabei handelt es sich um hohle Röhren mit einem Durchmesser von bis zu einigen Mikrometern, die sich durch den gesamten gewachsenen Kristall bis zur Oberfläche erstrecken können. Für das Auftreten dieser Defekte wurden bisher viele verschiedene, teilweise widersprüchliche, Erklärungen vorgeschlagen. Die meisten stützen sich auf Franks Theorie [3, 7], wonach eine Korrelation zwischen Schraubenversetzungen und Micropipes im Kristall besteht. Ab einer bestimmten Größe des Burgersvektors nimmt das Spannungsfeld in der Umgebung der Schraubenversetzung stark zu, so dass es energetisch günstiger wird, eine hohle Röhre zu bilden.

Nach Tsvetkov et al. [29, 43] können die Auslöser für die Bildung von Micropipes grob in wachstumsspezifische und technologische Ursachen unterteilt werden. Die wachstumsspezifischen Auslöser umfassen sowohl thermodynamische als auch kinetische Aspekte und beinhalten u.a. die Bildung von Versetzungen und die Oberflächenmorphologie des Keimkristalls. Als technologische Verursacher werden Prozessinstabilitäten, Verunreinigungen und mangelnde Keimpräparation angeführt.

Umfassende Betrachtungen zur Entstehung von Micropipes in SiC finden sich beispielsweise in [42–45].

Durch konsequente Weiterentwicklung des modifizierten Lely-Verfahrens konnte die Micropipe-Dichte in kommerziell erhältlichen SiC-Substraten in den letzten Jahren kontinuierlich vermindert werden. Der Marktführer *Cree Research* liefert seine SiC-Wafer in verschiedenen Kategorien der Micropipe-Dichte. Standard 4H-SiC und 6H-SiC ist mit 31-100 Micropipes/cm² erhältlich. Die hochwertigsten Substrate weisen hingegen weniger als 5 Micropipes/cm² auf [1].

Das 3C-SiC ist aufgrund der Isotropie seiner elektrischen Eigenschaften und der theoretisch höchsten Elektronenbeweglichkeit unter den SiC-Polytypen von besonderem Interesse. Oberhalb 2000°C ist es jedoch thermisch instabil und wandelt sich in hexagonale SiC-Polytypen um [46]. Die Herstellung von 3C-SiC Volumenkristallen über das modifizierte Lely-Verfahren ist nur sehr eingeschränkt möglich. Die für das 3C-SiC-Wachstum benötigte siliziumreiche Gasatmosphäre [47] resultiert in einer überaus schwierigen Prozessführung. Die niedrige Wachstumstemperatur von unter 2000°C führt zudem zu einer vergleichsweise niedrigen Wachstumsrate. In der Literatur existieren nur wenige Berichte über ein erfolgreiches 3C-SiC-Wachstum im modifizierten Lely-Verfahren [48]. Die Untersuchung der hergestellten Volumen kristalle zeigt eine hohe Defektdichte und einen hohen Anteil an nicht-kubischen SiC-Polytypen.

2.4 Heteroepitaktische 3C-SiC-Schichten

Aufgrund der in Abschnitt 2.3 geschilderten wenig aussichtsreichen Möglichkeiten, 3C-SiC als Volumenkristalle zu wachsen, wurde in der Vergangenheit intensiv an der Synthese des kubischen Polytyps durch heteroepitaktisches Schichtwachstum geforscht. Zu den wichtigsten hierbei verwendeten Substratmaterialien zählen Si, 4H-SiC und 6H-SiC. Von besonderem Interesse ist dabei Silizium, da es kostengünstig, großflächig und mit hoher kristalliner Qualität verfügbar ist. Ferner bietet diese Materialkombination potentiell die Möglichkeit einer Herstellung von integrierten Si/SiC-Bauelementen.

Problematisch in der 3C-SiC Heteroepitaxie auf Si ist jedoch die relativ große Gitterfehlانpassung von 19,73% [49]. Sie verhindert ein pseudomorphes Wachstum und führt zur Formierung einer semikohärenten Si/SiC-Grenzfläche. Mechanische Spannungen werden dort durch eine periodische Anordnung von Fehlanpassungsversetzungen relaxiert. Dies führt zu einer vermehrten Defektgenerierung in der aufwachsenden SiC-Schicht. Der Unterschied bezüglich der thermischen Ausdehnungskoeffizienten beider Materialien beträgt 8% [50]. Damit ergeben sich Probleme aus den hohen Substrattemperaturen, die für das Schichtwachstum erforderlich sind. Der Abkühlvorgang am Ende des Depositionsprozesses führt zu zusätzlich mechanischen Spannungen in den Schichten, die ihre optischen und elektrischen Eigenschaften verschlechtern [51].

Im Laufe der Zeit wurden viele verschiedene Verfahren zum heteroepitaktischen Wachstum von 3C-SiC auf Silizium entwickelt. Im nachfolgenden sollen die wichtigsten kurz angesprochen werden. Bis heute konnte jedoch noch keine Schichtqualität

erreicht werden, die eine kommerzielle Anwendung in der Halbleiterindustrie erlaubt. In der Chemischen Gasphasenabscheidung bei Atmosphärendruck (Atmospheric Pressure Chemical Vapour Deposition, APCVD) findet die SiC-Synthese bei Substrattemperaturen oberhalb 1200°C statt. Dabei werden getrennte Prozessgase, sog. Precursor, für Kohlenstoff und Silizium mit Wasserstoff als Trägergas verwendet. Gewöhnlich dienen C_2H_2 und C_3H_8 als Kohlenstoff-Precursor, SiH_4 und Si_2H_6 als Silizium-Precursor [50, 52]. Nachteil dieser Methode ist die hohe erforderliche Substrattemperatur hinsichtlich der Problematik der thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Si und SiC. Ferner kann es in diesem Temperaturbereich bereits zu einer unerwünschten Veränderung der Dotierungsverteilung im Si-Substrat kommen.

Die Niedrigdruck-CVD (Low Pressure CVD, LPCVD) erlaubt in Verbindung mit einem gemeinsamen siliziumorganischen Precursor für Si und C Wachstumstemperaturen unterhalb 1000°C. Zu den wichtigsten verwendeten Prozessgasen zählen Methylsilan $SiCH_3H_3$ [53, 54], Dimethylisopropylsilan $(CH_3)_2CHSiH(CH_3)_2$ [55], Silacyclobutan $c-C_3H_6SiH_2$ [56, 57] und Disilabutan $H_3SiCH_2SiH_2CH_3$ [58].

In der Feststoffquellen-Molekularstrahlepitaxie (Solid Source Molecular Beam Epitaxy, SSMBE) werden hochreaktiver elementarer Kohlenstoff und Silizium unter Ultrahochvakuumbedingungen auf ein geheiztes Siliziumsubstrat aufgedampft. Technisch wird dies durch die Verwendung von zwei Elektronenstrahlverdampfern mit pyrolytischen Graphit und Silizium als Verdampfungsgut realisiert. Die Bildung von 3C-SiC wird durch die Verwendung von elementarem Kohlenstoff bereits aber einer Substrattemperatur von 600°C beobachtet [59]. Dies entspricht der niedrigsten in der Literatur bekannten Wachstumstemperatur für 3C-SiC auf Si unabhängig vom angewandten Verfahren. Untersuchungen haben jedoch gezeigt, dass die im Bereich von 600-800°C gewachsenen Schichten einen hohen Anteil an Fehlorientierungen und nicht-kubischen SiC-Polytypen enthalten [60]. Wachstumstemperaturen in der SSMBE liegen deshalb gewöhnlich im Bereich von 800-1000°C [61–63].

Das in dieser Arbeit verwendete Verfahren zum epitaktischen Wachstum von 3C-SiC-Schichten unter Verwendung einer C_{60} -Kohlenstoffquelle wurde erstmals von Hamza et al. demonstriert [2]. Es gestattet eine minimale Substrattemperatur von etwa 810°C. Im nachfolgenden Kapitel soll dieses Verfahren mit den verwendeten experimentellen Bedingungen ausführlich dargestellt werden.

Kapitel 3

Synthese von 3C-SiC-Schichten durch C₆₀-Deposition

3.1 Fullerene

3.1.1 Grundstruktur der Fullerene

Als Fullerene bezeichnet man die dritte Modifikation des Kohlenstoffs neben Graphit und Diamant. Entdeckt wurden sie 1985 von Robert F. Curl, Harold W. Kroto und Richard E. Smalley [64], die hierfür 1996 den Nobelpreis für Chemie erhielten [65]. Es handelt sich dabei um eine Gruppe geschlossener C_n-Makromoleküle, in denen jedes Kohlenstoffatom kovalent an seine drei nächsten Nachbaratome gebunden ist. Geometrisch betrachtet ist ein Fullerenmolekül ein Polyeder, in dem die C-Atome die Ecken und die Bindungen die Kanten darstellen. Die sphärische Grundstruktur der Moleküle setzt sich aus pentagonalen und hexagonalen Flächensegmenten zusammen.

Gemäß dem Eulerschen Theorem [66] besteht für reguläre Polyeder eine Beziehung zwischen der Anzahl der Ecken v , Kanten e und Flächen f .

$$v + f = e + 2 \quad (3.1)$$

Aufgrund der drei Bindungspartner des Kohlenstoffs besitzt ein C_n-Fullerenmolekül $e = \frac{3n}{2}$ Kanten, $v = n$ Ecken und folglich $f = \frac{n}{2} + 2$ Flächen. Mit der Anzahl p der Pentagone und h der Hexagone gilt :

$$\frac{5p + 6h}{3} = n \quad (3.2)$$

$$p + h = \frac{n}{2} + 2 \quad (3.3)$$

Durch Lösen des aus Gl. 3.2 und Gl. 3.3 bestehenden Gleichungssystems ergibt sich, dass jedes C_n-Fullerenmolekül genau zwölf Pentagone und $\frac{n}{2} - 10$ Hexagone besitzt. Durch die Integration von zwölf Pentagonalen wird sichergestellt, dass die Moleküle geschlossen sind und sich keine offenen Strukturen bilden. Mathematisch betrachtet können Fullerene mit jeder Anzahl von Hexagonalen außer $h = 1$ konstruiert werden [67]. Das theoretisch kleinstmögliche Fullerenmolekül ist das C₂₀, das mit $h = 0$ lediglich aus zwölf Pentagonalen besteht und damit die Form eines Pentagondodekaeders besitzt.

Tatsächlich aber ist das C₆₀-Molekül der kleinste stabile Vertreter der Fullerene. Die Regel der isolierten Pentagone (Isolated Pentagon Rule, IPR) besagt, dass nur Fullerene stabil sind, in denen Fünfecke nicht direkt aneinander grenzen, sondern durch Sechsecke voneinander getrennt sind. Bei annelierten Pentagonalen werden die Moleküle aufgrund ihrer elektronischen Struktur und intramolekularer Spannungen destabilisiert. Dieses Bauprinzip der Fullerenmoleküle wurde von Kroto [68] aufgrund experimenteller Beobachtungen erstmals vorgeschlagen und von Schmalz et al. [69] später theoretisch begründet.

Für höhere Fullerene ab C₇₆ erlaubt die IP-Regel mehrere Isomere, d.h. C_n-Moleküle mit gleicher Anzahl n von Kohlenstoffatomen aber unterschiedlicher Struktur (2 Isomere für C₇₆, 5 Isomere für C₇₈, 7 Isomere für C₈₀ usw.). Es können jedoch nicht alle möglichen IP-Isomere eines Fulleren tatsächlich beobachtet werden. Der Grund hierfür ist bislang noch unbekannt. Für das C₇₆ findet man beispielsweise nur eines der zwei möglichen IP-Isomere, für das C₇₈ drei von fünf, für das C₈₀ eins von sieben.

3.1.2 Das C₆₀-Molekül

Das C₆₀ ist mit einem Durchmesser von 0,710 nm [70] das kleinste Fulleren, das der IP-Regel genügt. Es besitzt die Form eines abgeschnittenen Isokaeders (s. Abb. 3.1) mit zwölf pentagonalen und 20 hexagonalen Oberflächensegmenten. Diese Struktur entspricht genau der eines europäischen Fußballs und ebenso der geodätischen Kuppel, die der amerikanische Architekt Richard Buckminster Fuller für die Weltausstellung 1967 in Montreal entworfen hatte. Aus diesem Grund erhielt das C₆₀-Molekül von seinen Entdeckern den Namen *Buckminster Fulleren*. Später erfuhr der Begriff *Fullerene* eine Ausweitung zur allgemeinen Bezeichnung der neu entdeckten Kohlenstoffmodifikation.

Ausgehend von der Graphitstruktur sollen im nachfolgenden die Bindungsverhält-

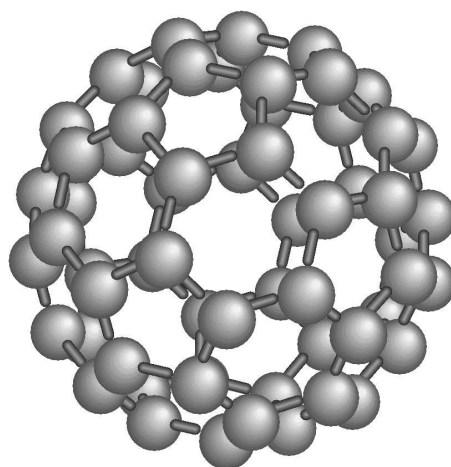


Abb. 3.1: *Buckminster Fulleren* C_{60} . Die C-C-Bindungen bilden 12 Pentagone und 20 Hexagone.

nisse im C_{60} -Molekül näher betrachtet werden. In den hexagonalen Planarschichten des Graphits ist jedes C-Atom über σ -Bindungen sp^2 -hybridisierter Orbitale an die drei nächsten Nachbaratome gebunden. Die jeweils mit einem Elektron besetzten p_z -Orbitale bilden ein delokalisiertes π -System, das die schwache Wechselwirkung zwischen den Schichten bestimmt. Das C_{60} -Molekül kann als eine Art sphärischen Graphits betrachtet werden. Der Übergang von der planaren zur geschlossenen sphärischen Struktur erfolgt dabei durch geeigneten Einbau von Pentagonen. Durch die resultierende Krümmung werden die C-Atome pyramidalisiert, d.h. aus der Ebene, die durch die drei Bindungspartner bestimmt wird, herausgehoben. Die Folge ist eine Rehybridisierung, so dass die σ -bindenden Hybridorbitale nicht mehr zu je ein Drittel aus s- und zwei Drittel aus p-Orbitalen zusammengesetzt sind. Ferner besitzen die zur π -Bindung beitragenden Orbitale nicht mehr reinen p-Charakter. Abb. 3.2 zeigt die Rehybridisierung der Orbitale abhängig von der Konfiguration von Pentagonen und Hexagonen.

Im Falle des Graphits (s. Abb. 3.2(a)) liegt eine perfekte sp^2 -Hybridisierung vor. Mit steigender Anzahl der Pentagone weicht die Hybridisierung immer mehr davon ab, so dass das instabile C_{20} (s. Abb. 3.2(d)) nahezu sp^3 -hybridisiert ist. Die Situation in Abb. 3.2(b) entspricht der Struktur im C_{60} -Molekül. In den σ_1 -Hybridorbitalen nimmt der s-Charakter zu, in den σ_2 - und σ_3 -Orbitalen der p-Charakter. Die π -Orbitale haben ihren reinen p-Charakter verloren. Die Hybridisierung liegt folglich zwischen sp^2 und sp^3 . Die π -Bindungselektronen sind im Gegensatz zum Graphit nicht vollständig delokalisiert, sondern zeigen eine erhöhte Aufenthaltswahrscheinlichkeit entlang der [6-6]-Ringbindungen zwischen zwei annelierten Hexagonen. Die [6-6]-Bindungen besitzen deshalb Doppelbindungscharakter, während die

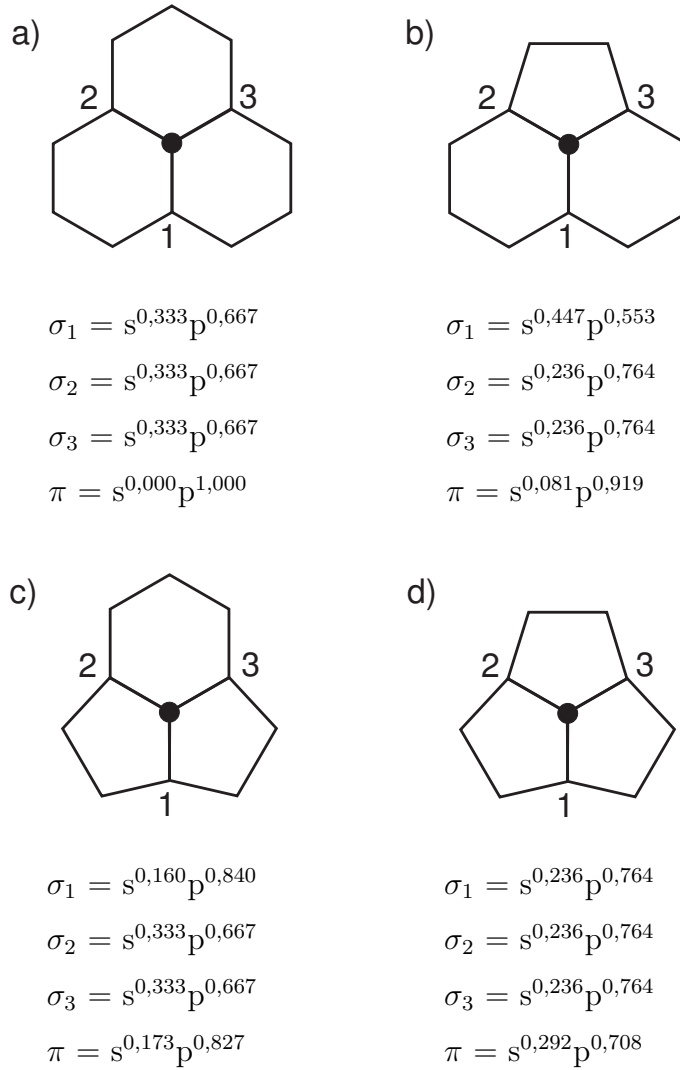


Abb. 3.2: Hybridisierung der σ - und π -Orbitale in Abhängigkeit der Konfiguration von C-Pentagonen und C-Hexagonen, nach [71]. Im Graphit liegt nach (a) eine perfekte sp^2 -Hybridisierung vor. Die Konfiguration in (b) entspricht der Struktur im C₆₀-Molekül. Die nicht der IPR-Regel gehorchenden Konfigurationen sind in (c) und (d) dargestellt.

einem Fünfring und Sechsring gemeinsamen [5-6]-Bindungen Einfachbindungen entsprechen. Die [6-6]-Bindungslänge wird mit 1,369 Å bis 1,418 Å angegeben, die [5-6]-Bindungslänge mit 1,436 Å bis 1,465 Å [72–74]. Eine reine C-C-Doppelbindung ist dagegen mit 1,35 Å kürzer und eine reine C-C-Einfachbindung mit 1,54 Å deutlich länger als die Bindungen im C₆₀-Molekül.

Die elektronischen Zustände des C₆₀-Moleküls können näherungsweise mit Hilfe der Hückel-Molekülorbital-Theorie berechnet werden, wobei in diesem Fall nur die Elektronen des π -Systems betrachtet werden. Das π_5-h_u Niveau ist danach das höchste besetzte Molekülorbital (Highest Occupied Molecule Orbital, HOMO). Es ist fünf-fach entartet und vollbesetzt. Das niedrigste unbesetzte Niveau (Lowest Unoccupied Molecule Orbital, LUMO) ist das dreifach entartete π_5-t_{1u} -Niveau.

Weiterführende theoretische Arbeiten zu den elektronischen Eigenschaften des C₆₀-Fullerens berücksichtigen alle Elektronen im Molekül [75, 76]. Die Ergebnisse aus den vereinfachten Betrachtungen der Hückel-Methode werden dabei im wesentlichen bestätigt.

Wichtige Größen zur Beschreibung der Moleküleigenschaften sind das Ionisationspotential I_P^1 und die Elektronenaffinität E_a . Der relativ große Unterschied zwischen $I_P^1 = 7,6$ eV [77] und $E_a = 2,65$ eV [78] für das C₆₀ verdeutlicht, dass diese Moleküle eher dazu tendieren, Elektronen aufzunehmen als abzugeben.

3.2 Wechselwirkung von C₆₀-Molekülen mit Si-Oberflächen

Zum besseren Verständnis der physikalischen und chemischen Eigenschaften von C₆₀-Fullerenen wurden in der Vergangenheit zahlreiche Studien zur Wechselwirkung mit Siliziumoberflächen durchgeführt.

Die Adsorption einzelner C₆₀-Moleküle auf Si(001)(2×1) und Si(111)(7×7) wurde mittels Rastertunnelmikroskopie (Scanning Tunneling Microscopy, STM) und -spektroskopie (Scanning Tunneling Spectroscopy, STS) eingehend untersucht [79, 80]. Es wurde festgestellt, dass die bei Raumtemperatur aufgedampften C₆₀-Moleküle relativ schwach an die Si-Oberfläche gebunden sind. Verantwortlich für diese Physisorption ist ein Ladungstransfer vom Si-Substrat zum energetisch niedrigsten unbesetzten C₆₀-Molekülorbital LUMO. Auf Si(001) findet man einen zweiten alternativen Bindungsmechanismus. Hierbei sind die Adsorbatmoleküle über die Van-der-Waals-Wechselwirkung schwach an das Substrat gebunden. Die elektronische

Struktur der C₆₀-Moleküle entspricht in diesem Fall nahezu dem ungebundenen Zustand.

Nach einem kurzzeitigen Erhitzen des Si-Substrats auf 600°C zeigt sich eine wesentliche Zunahme der Bindungsstärke zwischen Adsorbat und Substrat. C-C-Bindungen innerhalb der C₆₀-Moleküle sind aufgebrochen und die Moleküle über Si-C-Bindungen kovalent an das Substrat gebunden. Es wird angenommen, dass mit steigender Substrattemperatur die Anzahl der Si-C-Bindungen weiter zunimmt, was schließlich zur Fragmentation der C₆₀-Moleküle führt. Letzteres konnte mit Hilfe von Auger-Elektronenspektroskopie (Auger Electron Spectroscopy, AES) und Rastertunnelmikroskopie nachgewiesen werden.

Auf Si(001)-Oberflächen setzt die Fragmentation der C₆₀-Moleküle ab einer Substrattemperatur von 775°C ein [81]. Für Si(111) wurde ein geringfügig niedrigerer Wert von 750°C gemessen [82]. Der Grund hierfür ist eine vergleichsweise höhere Reaktivität der Si(111)-Oberfläche gegenüber (001)-Silizium, die darin begründet liegt, dass die C₆₀ mit Si(111) mehr kovalente Bindungen eingehen können als mit Si(001) [82].

Durch Reaktion der Kohlenstoffatome aus den fragmentierten C₆₀-Fullerenen mit Si-Oberflächenatomen kommt es zur Bildung von SiC-Inseln auf der Substratoberfläche. Diesen Effekt machten sich Hamza et al. zunutze und demonstrierten 1994 erstmals das heteroepitaktische Wachstum von 3C-SiC auf Si(001) und Si(111) durch C₆₀-Karbonisierung [2].

3.3 Vorarbeiten zum 3C-SiC-Wachstum auf Si-Substraten

Ausgehend von den Arbeiten von Hamza et al. [83–85] wurde das Verfahren der C₆₀-Karbonisierung von Si-Substraten stetig weiterentwickelt [86–88]. SiC-Schichten wurden auf Si(001) und Si(111) durch alleinige Deposition von C₆₀-Fullerenen gewachsen und die Schichteigenschaften in Abhängigkeit von den Prozessparametern untersucht. Es konnte gezeigt werden, dass heteroepitaktisches 3C-SiC-Wachstum bereits ab einer Substrattemperatur von 810°C möglich ist. Um phasenreine Schichten ohne nicht-kubische Polytypen zu erhalten, muss die C₆₀-Deposition unter hinreichend guten Vakuumbedingungen, d.h. bei Restgasdrücken unterhalb 10⁻⁴ Pa erfolgen [89]. Eine Erhöhung der Substrattemperatur führt zusätzlich zu einer Texturverbesserung, die auf die erhöhte Mobilität der Si- und C-Atome während des Schichtwachstums zurückzuführen ist. Die besten textuellen Eigenschaften konnten

im Bereich von 900-950°C erzielt werden [89].

Alle mit alleiniger C_{60} -Deposition gewachsenen 3C-SiC-Schichten zeigen unabhängig von den gewählten Prozessparametern eine Si:C=1:1 Stöchiometrie. Das für die SiC-Synthese benötigte Silizium wird während des Schichtwachstums dem Substrat entnommen, was zur Bildung von Hohlräumen unter der SiC-Schicht (s. Abb. 3.4) führt.

Basierend auf den Untersuchungen mittels REM und TEM wurde in [89] ein Modell zum 3C-SiC-Schichtwachstum durch C_{60} -Deposition auf Si entwickelt, das in Abb. 3.3 schematisch dargestellt ist.

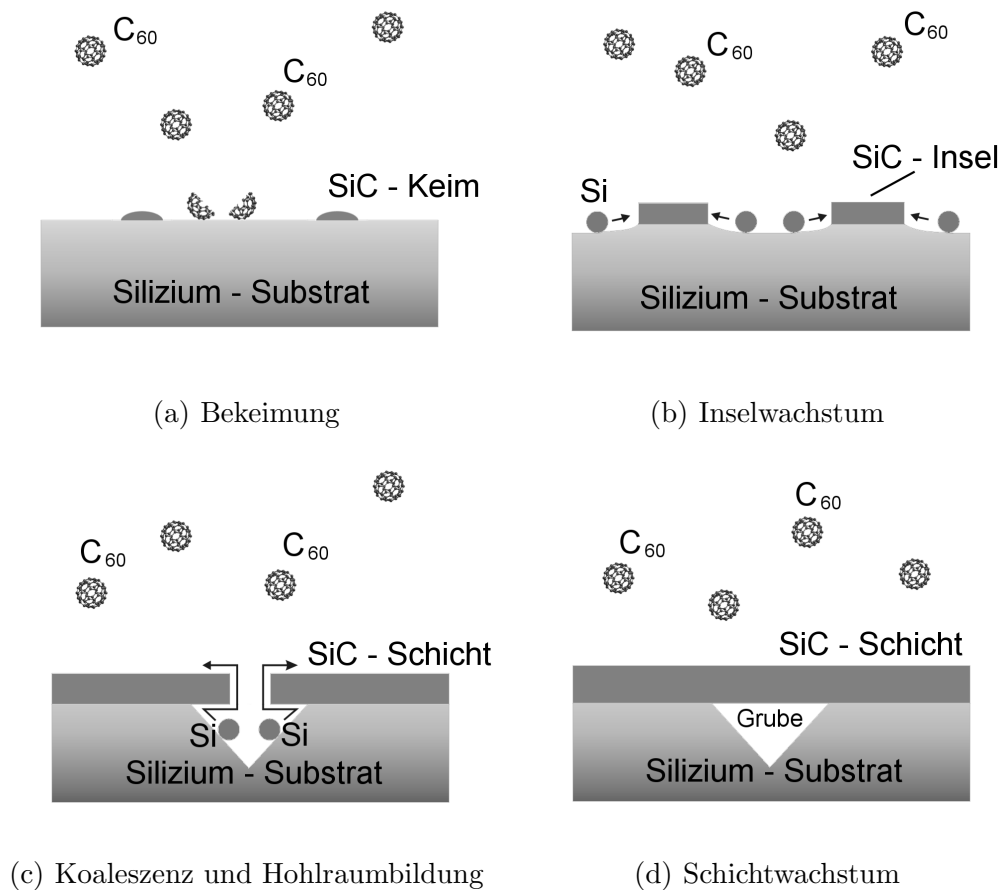


Abb. 3.3: Schematische Darstellung des 3C-SiC Wachstums auf Silizium bei alleiniger Deposition von C_{60} . Es wird Grubenbildung im Si-Substrat durch Ausdiffusion von Si beobachtet.

Ein Teilaspekt dieses Modells ist die Wechselwirkung von C_{60} -Molekülen mit 3C-SiC-Oberflächen. Sie ist bis heute noch nahezu unerforscht. Experimente haben allerdings gezeigt, dass auch in diesem Fall beim Überschreiten einer Temperaturschwelle eine Fragmentation adsorbierter C_{60} -Moleküle stattfindet. Es wird vermutet, dass die C-Atome der Fullerenmoleküle bei hohen Temperaturen kovalente Bindungen

mit den Si-Atomen der SiC-Oberfläche eingehen [90]. Dadurch brechen intramolekulare C-C-Bindungen auf, und die C_{60} -Moleküle werden instabil. Bezüglich der Grenztemperatur, die überschritten werden muss, um eine C_{60} -Fragmentation auf 3C-SiC-Oberflächen zu erreichen, existieren in der Literatur keine genauen Aussagen. Da jedoch ein 3C-SiC(001)-Schichtwachstum auf Si(001) durch C_{60} -Deposition erst oberhalb 810°C erreicht werden kann, ist anzunehmen, dass die Fragmentationstemperatur für 3C-SiC(001)-Oberflächen etwas unterhalb dieses Wertes liegt.

In der Frühphase des 3C-SiC-Wachstums auf Si (s. Abb. 3.3(a)) treffen die C_{60} -Moleküle auf die Substratoberfläche auf und fragmentieren. Durch die Reaktion der freigesetzten C-Atome mit den Si-Atomen der Oberfläche bilden sich epitaktisch orientierte 3C-SiC-Inseln. Bei anhaltender C_{60} -Deposition steigt ihre Anzahl und die Fläche der freien Si-Oberfläche nimmt stetig ab. Als Folge davon treffen vermehrt C_{60} -Moleküle auf den Oberflächen der SiC-Inseln auf und zerbrechen dort. Die SiC-Inseln beginnen dadurch überwiegend lateral zu wachsen (s. Abb. 3.3(b)). Bei diesem Prozess diffundieren sowohl freigesetzte C-Atome über die SiC-Oberflächen zum Silizium als auch Si-Atome entlang der Substratoberfläche zu den SiC-Inseln. Bedingt durch die Si-Oberflächendiffusion beobachtet man um die SiC-Inseln Gräben im Substrat. Bei fortschreitender Bedampfung mit C_{60} setzt noch vor der Koaleszenz der Inseln die Grubenbildung ein (s. Abb. 3.3(c)). Während sich zwei Inseln durch ihr Wachstum einander annähern, wird in dem Gebiet zwischen ihnen ständig Silizium durch Oberflächendiffusion zur SiC-Synthese entfernt. An diesen Stellen entstehen schließlich Löcher im Substrat, die im weiteren Wachstumsprozess durch die SiC-Schicht allmählich überdeckt werden. Durch Öffnungen in der SiC-Schicht oberhalb der Gruben gelangt zunächst weiterhin Si über Oberflächendiffusion an die Schichtoberfläche, wo eine Reaktion mit den C-Atomen fragmentierter C_{60} -Moleküle stattfinden kann. Das Schichtwachstum wird relativ lange über diesen Transportmechanismus der Si-Atome bestimmt. Mit dem Schließen der Löcher in der Schicht wird die Si-Oberflächendiffusion zur SiC-Oberfläche graduell durch eine Si-Diffusion entlang der SiC-Korngrenzen abgelöst (s. Abb. 3.3(d)). Das Schichtwachstum verlangsamt sich entsprechend, kommt jedoch nicht zum Erliegen.

Abb. 3.4 zeigt die REM-Aufnahmen einer 150 nm dicken 3C-SiC-Schicht auf Si(001), die durch alleinige C_{60} -Deposition bei einer Substrattemperatur von 900°C gewachsen wurde.

Gemäß den Ausführungen in Abschnitt 4.5 können bei hinreichend großer Primärenergie der Elektronen im REM die Hohlräume im Si-Substrat auch unterhalb der ge-

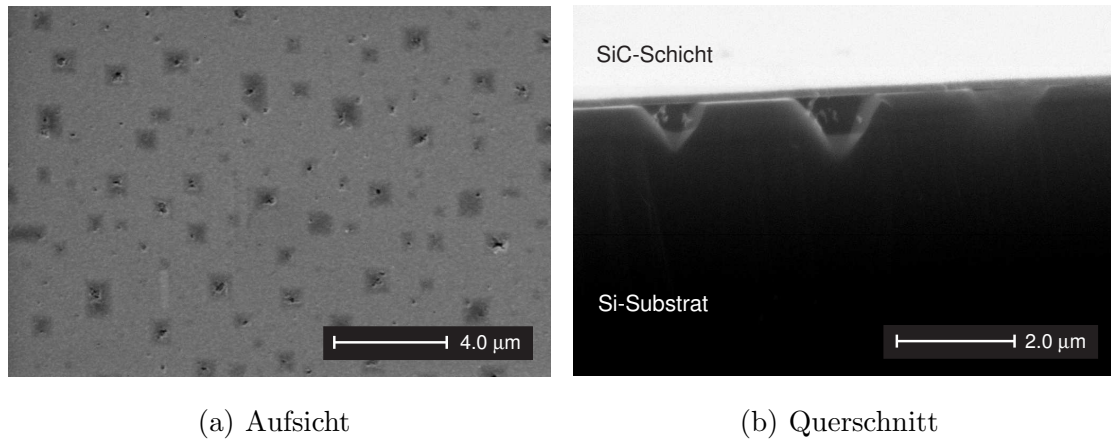


Abb. 3.4: REM-Aufnahme einer 150 nm dicken 3C-SiC-Schicht auf Si(001) mit Grubenbildung [89]. Es wurde eine Beschleunigungsspannung von 30 kV verwendet. (a) Aufsicht: Die ausgedehnten dunklen Flächen zeigen Hohlräume im Si(001) unterhalb der geschlossenen 3C-SiC-Schicht. Löcher in der SiC-Schicht selbst sind als kleine dunkle Flächen erkennbar. (b) Querschnitt: Die Hohlräume werden durch {111}-Si-Ebenen begrenzt.

geschlossenen SiC-Schicht beobachtet werden. Die ausgedehnten dunklen Flächen in Abb. 3.4(a) zeigen eben diese Hohlräume. Ferner befinden sich in der SiC-Schicht selbst noch häufig kleine Löcher oberhalb der Hohlräume, die als kleine dunklere Bereiche erkennbar sind. Aus der Literatur ist bekannt, dass die Hohlräume im Si-Substrat gewöhnlich durch {111}-Si-Ebenen begrenzt werden, um die Oberflächenenergie zu minimieren. Entsprechend besitzen diese Hohlräume bei Verwendung von Si(001) die Form einer Pyramide, deren Spitze zum Substrat zeigt. Die Querschnitts-REM-Aufnahme in Abb. 3.4(b) bestätigt dies.

Hinsichtlich der Verwendung von 3C-SiC-Schichten in der Halbleiterelektronik sind Hohlräume im Si-Substrat jedoch unbedingt zu vermeiden. Darüber hinaus wird durch die Hohlraumbildung die erreichbare SiC-Schichtdicke begrenzt, da Wachstum und Koaleszenz der Gruben letztendlich zur Delamination führen.

Eine der Zielsetzungen in der vorliegenden Arbeit war es, hohlraumfreies epitaktisches 3C-SiC-Schichtwachstum auf Si(001)-Substraten mit einer C₆₀-Kohlenstoffquelle zu erreichen. Zu diesem Zweck wurde simultan zu den C₆₀-Fullerenen auch Silizium mit geeigneter Rate verdampft. Zur Realisierung der hierfür notwendigen experimentellen Bedingungen wurde im Rahmen dieser Arbeit eine entsprechende Ultrahochvakuum-Apparatur konzipiert und aufgebaut. Zusätzlich wurde diese Anlage mit einer RHEED-Analytik ausgestattet, um erstmals das Schichtwachstum in-situ untersuchen zu können. Darüber hinaus diente diese Analysemethode auch

als entscheidendes Werkzeug zur Prozesskontrolle.

Unter den geschaffenen Voraussetzungen gelang es im weiteren Schritt, erstmals homoepitaktisches Wachstum auf 3C-SiC-Pseudosubstraten mittels einer C_{60} -Kohlenstoffquelle zu erreichen.

3.4 Anlage zur Synthese von 3C-SiC-Schichten

Abb. 3.5 zeigt den schematischen Aufbau der Ultrahochvakuum-Apparatur zur Synthese dünner 3C-SiC Schichten mittels Deposition von C_{60} und Si.

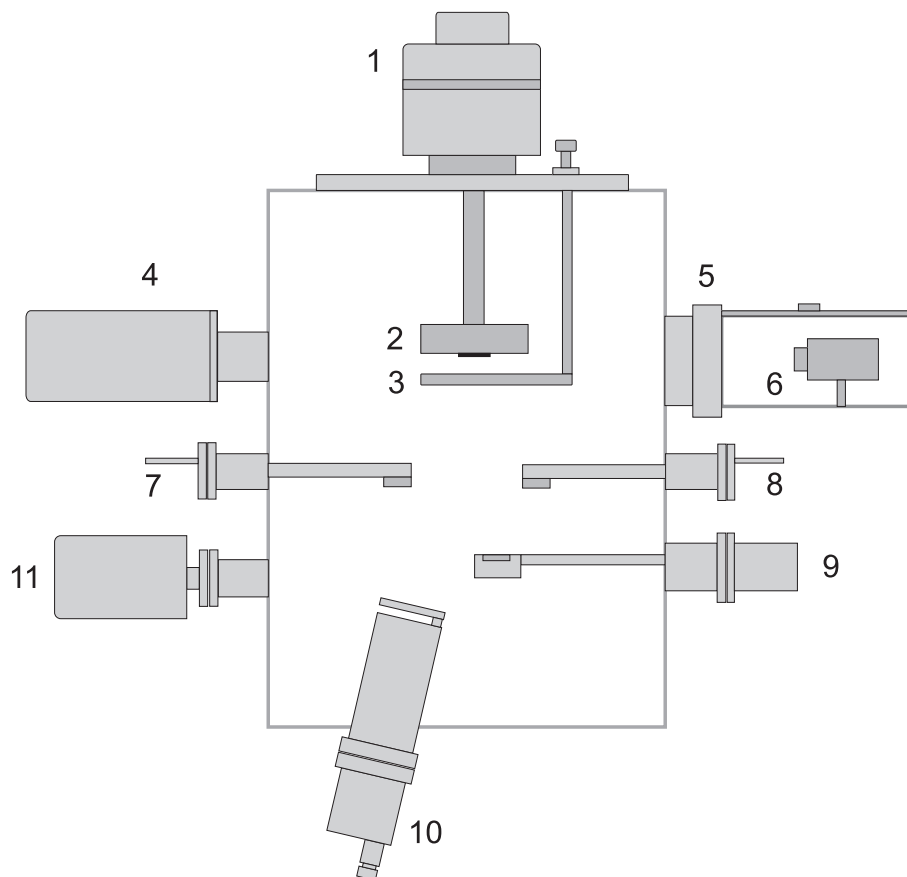


Abb. 3.5: Schematische Darstellung der UHV-Anlage zur SiC-Synthese; 1: Probenmanipulator, 2: Substratheizer, 3: Substrat-Shutter, 4: RHEED Elektronenkanone 5: RHEED-Schirm, 6: CCD-Kamera, 7: Schwingquarzsensord für C_{60} -Depositionsraten, 8: Schwingquarzsensord für Si-Depositionsraten, 9: Elektronenstrahlverdampfer für Si, 10: Effusionszelle für C_{60} , 11: Quadrupol-Massenspektrometer zur Restgasanalyse

Mit Hilfe eines Pumpensystems aus Drehschieber- und Turbomolekularpumpe wird ein Basisdruck von etwa $2 \cdot 10^{-7}$ Pa erreicht. Ein Quadrupol-Massenspektrometer (11) dient zur Überwachung der Restgaszusammensetzung. Die Fullerenverdampfung er-

folgt über eine konventionelle Effusionszelle (10) mit Bornitrid-Tiegel. Die Verdampfungstemperatur wird über ein in der Zelle eingebautes Thermoelement (Typ C) gemessen und mittels eines PID-Reglers auf dem vorgegebenen Sollwert gehalten. Der verwendete Effusionszellen-Controller gestattet auch die Vorgabe komplexer zeitlicher Temperaturprofile zur Automatisierung des Depositionsprozesses. Die Zelle verfügt über einen eigenen Shutter, der sich manuell über eine Drehdurchführung öffnen und schließen lässt.

Zur Verdampfung des Siliziums wird ein Elektronenstrahlverdampfer (9) mit einem Tiegel aus glasartigem Kohlenstoff verwendet. Die Aufdampfraten für C_{60} und Si werden jeweils mit einem separaten Schwingquarz-Schichtdickenmonitor (7) bzw. (8) gemessen.

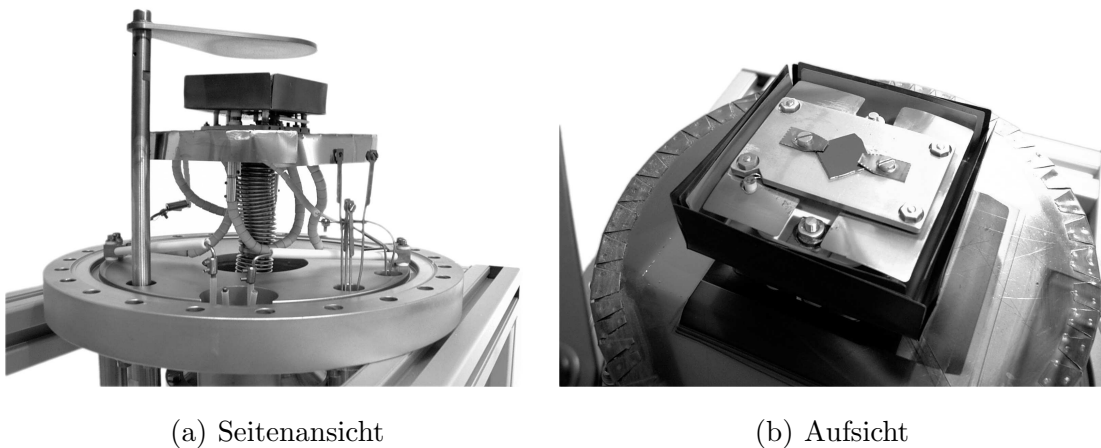


Abb. 3.6: Probenhalter bestehend aus Manipulator, Heizer und Shutter

In Abb. 3.6 ist der aus den Komponenten (1), (2) und (3) bestehende Probenhalter im Detail dargestellt. Das Substrat mit einer Größe von ca. 12×12 mm wird mittels zweier Schrauben und Klammern aus Molybdän auf einer Tantalplatte befestigt. Hinter der Ta-Platte befindet sich ein Boralectric-Heizelement, das aus einer Bornitrid-Ummantelung besteht, in die ein Heizleiter aus pyrolytischem Graphit eingelassen ist. Mit dieser Anordnung lässt sich eine Substrattemperatur von bis zu 1000°C erreichen.

Da am Substrat selbst kein Thermoelement zur Messung der Substrattemperatur während der Schichtdeposition angebracht werden kann, wird zur Temperaturmessung ein Thermoelement (Typ K) verwendet, das seitlich in die Ta-Platte eingelassen ist. Zur Berücksichtigung auftretender Temperaturgradienten wurde eine Kalibrierungsmessung bis zu einer maximalen Substrattemperatur von 950°C durchgeführt.

Dabei wurde jeweils simultan zur Temperatur der Ta-Platte die Temperatur des Substrats mittels eines zweiten Thermoelements (Typ K) gemessen, das auf dessen Oberfläche aufgeklebt war.

Die Ansteuerung des Probenheizers erfolgt über einen PID-Regler für die Substrattemperatur. Der verwendete Controller gestattet durch Vorgabe zeitlicher Temperaturprofile ein definiertes Aufheizen und Abkühlen der Proben zu Beginn und am Ende des Depositionsprozesses. Während der Schichtabscheidung wird die Substrattemperatur permanent auf dem vorgegebenen Sollwert gehalten.

Der am Probenhalter befindliche Shutter (3) lässt sich über eine Drehdurchführung manuell positionieren. Im geschlossenen Zustand verhindert er das Auftreffen der verdampften Materialien auf dem Substrat.

Zur in-situ Untersuchung des Schichtwachstums verfügt die Depositionskammer über eine RHEED-Analytik (siehe Abschnitt 4.4). Sie besteht im wesentlichen aus einer Elektronenkanone (4) und einem gegenüberliegend angebrachten Fluoreszenzschirm (5). Die zur Messung notwendige Positionierung des Substrats relativ zum Elektronenstrahl erfolgt über einen drehbaren Manipulator (1), auf dem der Heizer (2) fest montiert ist. Die Proben können damit sowohl in der Höhe positioniert als auch um die Manipulatorachse um bis zu 360° gedreht werden.

Eine am PC angeschlossene peltiergekühlte CCD-Kamera (6) gestattet die Aufnahme der am RHEED-Schirm (5) sichtbaren Beugungsbilder. Eine spezielle Software ermöglicht die Bearbeitung und Auswertung der gespeicherten Bilder.

3.5 Ablauf des Depositionsprozesses

Für die **heteroepitaktische Abscheidung** von 3C-SiC-Schichten wurden (001)-orientierte Siliziumsubstrate mit einer Größe von 12 × 12 mm verwendet. Vor dem Einbau in die UHV-Apparatur wurde die natürliche SiO₂-Schicht durch Ätzen mit HF-Säure entfernt und die Si-Oberfläche durch die entstehende Wasserstoffterminierung passiviert.

Nach dem Evakuieren der Depositionskammer wurde das Substrat innerhalb von 90 min auf die gewünschte Temperatur zwischen 810°C und 950°C zur Schichtabscheidung aufgeheizt. Oberhalb 500°C löste sich dabei die Wasserstoffterminierung auf und hinterließ die reaktive Si(001)-Oberfläche. Gleichzeitig wurde innerhalb von 90 min die C₆₀-Effusionszelle auf die gewünschte Verdampfungstemperatur zwischen 290°C und 380°C aufgeheizt. Anschließend wurde bei geschlossenem Substrat-Shutter der Effusionszellen-Shutter geöffnet und die C₆₀-Depositionsrates mit dem entsprechenden Schwingquarzsensoren gemessen. Nachdem sich der Messwert stabili-

siert hatte, erfolgte der sog. Karbonisierungsschritt. Durch alleinige Deposition von C_{60} wurde eine wenige Nanometer dicke 3C-SiC-Schicht, eine sog. Karbonisierungsschicht, auf dem Substrat abgeschieden. Der Substrat-Shutter wurde hierfür gerade solange geöffnet, bis das Signal der Si-Oberfläche aus dem RHEED-Beugungsbild verschwand. Dadurch wurde vermieden, dass sich aufgrund der SiC-Synthese bereits Gruben im Si-Substrat bilden. Im Anschluss daran wurde bei geschlossenem Substrat-Shutter der Elektronenstrahlverdampfer in Betrieb genommen. Die Si-Rate wurde mit dem zugehörigen Schwingquarzsensoren kontrolliert und bezüglich der C_{60} -Rate so eingestellt, dass sich das gewünschte Si:C-Aufdampfratenverhältnis ergab. Unter der Voraussetzung stabiler Depositionsraten wurde dann der Substrat-Shutter für die gleichzeitige Deposition von C_{60} und Si geöffnet. Nach Ablauf der gewünschten Depositionsdauer wurde der Substrat-Shutter geschlossen und der Substratheizer innerhalb von 90 min abgekühlt. Gleichzeitig erfolgte der Abkühlvorgang der C_{60} -Effusionszelle bei geschlossenem Zellen-Shutter. Der Elektronenstrahlverdampfer wurde durch schrittweise Verringerung des Emissionsstroms ebenfalls heruntergefahren.

Die **homoepitaktische Schichtabscheidung** erfolgte auf (001)-orientierten 3C-SiC-Pseudosubstraten, die durch Ionenstrahlsynthese hergestellt wurden. Eine kurze Darstellung dieses Verfahrens und der verwendeten Prozessparameter findet sich in Abschnitt 6.1.1. Zur Aufnahme auf dem Probenhalter wurden die Substrate in passende 12×12 mm große Stücke gebrochen.

Die Präparation zur Schichtabscheidung erfolgte mit zwei unterschiedlichen Methoden. Im einen Fall wurde das Substrat mit Aceton und Isopropanol im Ultraschallbad gereinigt und anschließend mit trockenem Stickstoff abgeblasen. Nach dem Einbau in die Depositionskammer wurde es für 150 min bei 950°C unter Hochvakuumbedingungen ausgeheizt. Im anderen Fall erfolgte die Reinigung mit Hilfe eines Wasserstoffplasmas in einer Mikrowellen-CVD-Anlage. Bezüglich der dabei verwendeten Parameter sei auf Tab. 7.2 im Anhang verwiesen. Auf diesen Substraten fand die Schichtabscheidung ohne vorheriges Ausheizen statt.

Der Depositionsprozess verlief analog zur heteroepitaktischen Schichtabscheidung, jedoch ohne anfänglichen Karbonisierungsschritt. Das 3C-SiC-Substrat wurde innerhalb von 90 min auf die Solltemperatur von 950°C zur Schichtabscheidung aufgeheizt. In dieser Zeitspanne wurden auch die beiden Verdampferquellen für C_{60} und Si in Betrieb genommen. Nachdem sich die Depositionsraten bei gewünschtem Si:C-Verhältnis stabilisiert hatten, wurde der Substrat-Shutter für die Schichtabscheidung geöffnet. Nach Ablauf der Depositionsdauer von 210 min wurde der Shutter wieder

geschlossen und die Probe innerhalb von 90 min abgekühlt. Zeitgleich wurden auch Effusionszelle und Elektronenstrahlverdampfer heruntergefahren.

Für die C₆₀-Verdampfung wurde während der gesamten Arbeit das *Golden Grade* Material der Firma Hoechst verwendet. Es weist eine Reinheit größer 99,4% auf. Der Restanteil besteht überwiegend aus organischen Lösungsmitteln, die durch Ausheizen des Materials bei 200°C für 24 Stunden entfernt wurden.

Die in der UHV-Apparatur integrierte RHEED-Analytik gestattete nicht nur die in-situ Untersuchung des 3C-SiC-Schichtwachstums, sondern diente auch als effektives Werkzeug zur Prozesskontrolle. Durch Beobachtung der Beugungsbilder konnte eine präzisere Einstellung des Depositionsratenverhältnisses von C₆₀ und Si erreicht werden als dies bei alleiniger Verwendung der Schwingquarz-Ratenmonitore möglich gewesen wäre. Siliziumreiche Wachstumsbedingungen während der homoepitaktischen Abscheidung zeichnen sich beispielsweise durch das Auftreten einer (3×2)-Rekonstruktion der 3C-SiC(001)-Oberfläche aus.

Kapitel 4

Analytische Verfahren

4.1 Rutherford-Rückstreu-spektrometrie

Die Rutherford-Rückstreu-spektrometrie (Rutherford Backscattering Spectrometry, RBS) gestattet die tiefenaufgelöste Untersuchung der chemischen Zusammensetzung oberflächennaher dünner Schichten. Hierbei macht man sich die Rutherfordstreuung, d.h. die elastische Streuung des Projektils P am Kern des Targetatoms T zunutze. Ein monoenergetischer Strahl leichter Ionen, in der Regel Heliumionen, wird auf das zu untersuchende Target gerichtet und das Energieverteilungsspektrum der Ionen gemessen, die unter einem festen Ausfallswinkel α_2 bei konstanten Einfallswinkel α_1 elastisch rückgestreut werden. Die Energie E_{in} der eingeschossenen Ionen liegt dabei typischerweise im Bereich von 1 MeV bis 3 MeV, da in diesem Energiebereich am unabgeschirmten Kern gestreut wird, ohne dass andererseits Kernreaktionen eine Rolle spielen.

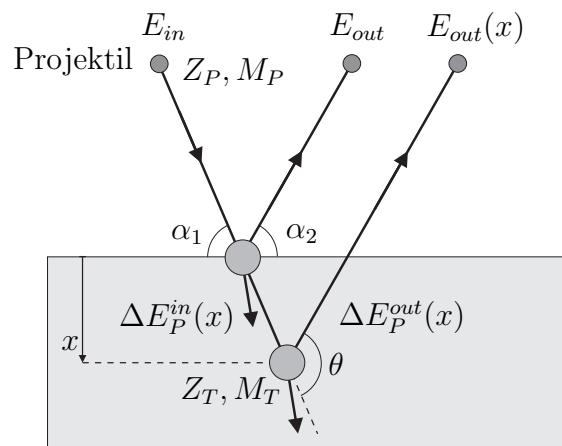


Abb. 4.1: Messprinzip der Rutherford Rückstreu-spektrometrie (RBS). Schematische Darstellung des Streuprozesses an der Oberfläche und in der Tiefe x des Targetmaterials.

In Abb. 4.1 ist der Stoßprozess an zwei Targetatomen in unterschiedlicher Tiefe der zu untersuchenden Probe schematisch dargestellt. Wird das Inzidenz bereits an der Targetoberfläche elastisch rückgestreut, so hängt die Rückstreuenenergie $E_{out} = K_{RBS} \cdot E_{in}$ des Ions lediglich vom kinematischen Faktor K_{RBS} ab, der als Verhältnis der Projektilenergie nach dem Stoß zur Projektilenergie vor dem Stoß definiert ist. Aus Energie- und Impulserhaltung beim elastischen Zweierstoß erhält man

$$K_{RBS} = \left[\frac{\sqrt{M_T^2 - M_P^2 \sin^2 \theta} + M_P \cos \theta}{M_T + M_P} \right]^2 \quad (4.1)$$

wobei M_T Masse des Targetatoms, M_P die Masse des Projektils und θ den Streuwinkel bezeichnet [91]. Die Rückstreuenenergie ist folglich umso größer, je größer die Masse M_T des Targetatoms ist.

Der K -Faktor bestimmt die energetische Trennung der verschiedenen Elementmassen in einer RBS-Messung. Betrachtet man die Energieänderung ΔE_{out} eines rückgestreuten Ions in Abhängigkeit einer Massendifferenz ΔM_T für verschiedene Stoßpartner, so erhält man

$$\Delta E_{out} = E_{in} \left(\frac{dK}{dM_T} \right) \Delta M_T \quad (4.2)$$

Da ΔE_{out} für $\theta=180^\circ$ maximal ist, wird die optimale Massentrennung im Energiespektrum bei einer theoretischen Detektorposition von $\theta=180^\circ$ erreicht. In der Praxis wird aufgrund der räumlichen Detektorausdehnung bei $\theta=170^\circ$ gemessen.

Findet der Stoßprozess hingegen in der Tiefe x der Probe statt, so muss der elektronische Energieverlust [92] des Projektils $\Delta E_P^{in}(x)$ auf dem Hinweg und $\Delta E_P^{out}(x)$ auf dem Rückweg zusätzlich berücksichtigt werden.

$$E_{out}(x) = K(E_{in} - \Delta E_P^{in}(x)) - \Delta E_P^{out}(x) \quad (4.3)$$

Neben der Rückstreuenenergie der Ionen bestimmt die Rückstreuwahrscheinlichkeit, welche durch den Rutherford-Wirkungsquerschnitt gegeben ist, das RBS-Spektrum. Für den differentiellen Rutherford-Wirkungsquerschnitt $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ gilt im Laborsystem

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{RBS} = \left(\frac{Z_P Z_T e^2}{16\pi \epsilon_0 E} \right)^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left[\sqrt{1 - \left[\frac{M_P}{M_T} \sin \theta \right]^2} + \cos \theta \right]^2}{\sqrt{1 - \left[\frac{M_P}{M_T} \sin \theta \right]^2}} \quad (4.4)$$

mit Z_T Kernladungszahl des Targetatoms und Z_P Kernladungszahl des Projektils [91]. Aufgrund der Z_P^2 -Abhängigkeit der Rückstreuwahrscheinlichkeit ist die RBS-

Analyse besonders sensitiv für schwere Elemente.

Das Softwarepaket RUMP [93, 94] dient zur Simulation und Auswertung der aufgenommenen RBS-Spektren. Zu diesem Zweck wird ein Modell des Targets bezüglich des Schichtaufbaus mit entsprechenden Elementkonzentrationen erstellt. Durch Anpassen der Simulation an das gemessene Spektrum erhält man quantitative Aussagen über die Tiefenverteilung der Elemente im untersuchten Material.

Für eine umfassende Darstellung der Theorie zur RBS sei an dieser Stelle auf die Literatur verwiesen [91, 95].

Zur Analyse der SiC-Schichten wurden zweifach positiv geladene Heliumionen $^4\text{He}^{2+}$ mit einer Energie von 1,8 MeV verwendet. Mit Hilfe eines Silizium-Oberflächensperrschichtdetektors wurden die rückgestreuten Teilchen unter einem Winkel von $\theta=170^\circ$ detektiert.

4.2 Elastische Rückstreudetektionsanalyse

Bei der elastischen Rückstreudetektionsanalyse (Elastic Recoil Detection Aalysis, ERDA) handelt es sich neben RBS um eine weitere Ionenstrahlanalysemethode zur tiefenaufgelösten Bestimmung der chemischen Zusammensetzung dünner Schichten. Sie beruht ebenfalls auf dem physikalischen Prinzip der elastischen Streuung von Ionen an den Atomkernen im untersuchten Material [96].

Schwere, hochenergetische Ionen (Projektile) mit Eingangsenergie E_{in} , Masse M_P und Kernladungszahl Z_P werden unter streifendem Einfall auf die zu untersuchende Probe geschossen. Die dadurch in Vorwärtsrichtung unter dem Streuwinkel θ elastisch herausgestreuten Targetatome (Ejektile) mit Masse M_T werden in einem Detektor bezüglich ihrer Kernladungszahl Z_T und Energie E_{out} analysiert [97]. Abb. 4.2 zeigt eine schematische Darstellung des Streuprozesses.

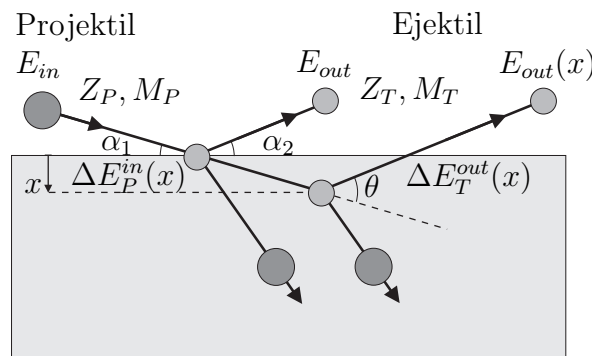


Abb. 4.2: Meßprinzip der Elastischen Rückstreudetektionsanalyse (ERDA). Schematische Darstellung des Streuprozesses an der Oberfläche und in der Tiefe x des Targetmaterials.

Stößt das Inzidenzion mit Eingangsenergie E_{in} bereits an der Probenoberfläche, so hängt die Energie $E_{out} = K_{ERDA} \cdot E_{in}$ des herausgestreuten Ejektils lediglich vom kinematischen Faktor K_{ERDA} ab, der als Verhältnis der Ejektil-Energie nach dem Stoß zur Projektil-Energie vor dem Stoß definiert ist. Aus Energie- und Impulserhaltung beim elastischen Zweierstoß ergibt sich:

$$K_{ERDA} = \frac{E_{out}}{E_{in}} = \frac{4 \frac{M_P}{M_T}}{\left(1 + \frac{M_P}{M_T}\right)^2} \cos^2 \theta \quad (4.5)$$

Wie aus der $\cos^2 \theta$ -Abhängigkeit des kinematischen Faktors K zu erkennen ist, sinkt der Energieübertrag vom Projektil zum Ejektil sehr schnell mit steigendem Streuwinkel θ . Aus diesem Grund werden ERDA-Messungen unter relativ kleinen Streuwinkel und daraus folgend unter streifendem Einfall der Projektile auf die Probe durchgeführt.

Findet der Stoßprozess in der Tiefe x der Probe statt, so ist wiederum der elektronische Energieverlust [92] des Projektils ΔE_P^{in} auf dem Hinweg zum Stoßpartner und des Ejektils ΔE_T^{out} beim Verlassen der Probe zu berücksichtigen.

$$E_{out}(x) = K(E_{in} - \Delta E_P^{in}(x)) - \Delta E_T^{out}(x) \quad (4.6)$$

Für den differentiellen Wirkungsquerschnitt $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ gilt im Laborsystem :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{ERDA} = \left(\frac{Z_P Z_T e^2}{8\pi\epsilon_0 E}\right)^2 \frac{\left(1 + \frac{M_P}{M_T}\right)^2}{\cos^3 \theta} \quad (4.7)$$

Da für ERDA-Untersuchungen $M_P \gg M_T$ gewählt wird und für leichte bis mittelschwere Elemente $M_T \simeq 2Z_T$ gilt, erhält man näherungsweise

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{ERDA} \sim \frac{Z_P^4}{E^2} \frac{1}{\cos^3 \theta} \quad (4.8)$$

Das bedeutet, dass die Wahrscheinlichkeit der elastischen Vorwärtsstreuung für alle leichten bis mittelschweren Elemente ungefähr gleich ist. ERDA besitzt damit im Gegensatz zur RBS-Analyse in diesem Massenbereich etwa die gleiche Nachweisempfindlichkeit für alle Elemente. Aufgrund der Z_P^4 -Abhängigkeit des Streuquerschnittes kann bei der ERD-Analyse schon mit sehr geringen Strahlströmen und damit nahezu zerstörungsfrei gemessen werden [97, 98].

Da bei ERDA im Gegensatz zur RBS, die aus der Probe herausgestreuten Targetatome detektiert werden, muss der Detektor zwei Aufgaben erfüllen. Zum einen ist

das Ejektil über seine Kernladungszahl Z_T zu identifizieren, zum anderen muss seine Energie E bestimmt werden. Zu diesem Zweck werden in der Regel sog. ΔE - E_{Rest} -Detektoren verwendet.

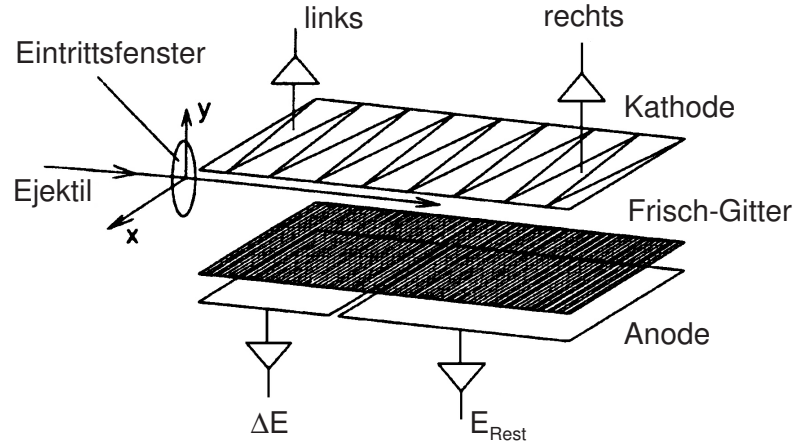


Abb. 4.3: Schematische Darstellung des ERDA-Detektors nach [99]. Eine Ionisationskammer mit zweigeteilter Anode dient als ΔE - E_{Rest} -Detektor.

Für die hier vorliegenden Messungen diente eine Ionisationskammer mit zweigeteilter Anode als ΔE - E_{Rest} -Detektor [99]. Abb. 4.3 zeigt eine schematische Darstellung dieses Detektortyps. Die Ejektile gelangen über das Eintrittsfenster in die Kammer und ionisieren durch Stöße das Detektorgas. Entsprechend ihrer Kernladungszahl Z_T verlieren sie dabei über der ersten Anodenhälfte die Energie ΔE , bevor sie nach dem Verlust ihrer Restenergie E_{Rest} über der zweiten Anodenhälfte zur Ruhe kommen. Aufgrund der zwischen den beiden Anodenhälften und der Kathode anliegenden Spannung resultiert jeweils ein entsprechender Stromfluss, der proportional zu ΔE bzw. E_{Rest} ist [97, 99]. Man erhält auf diese Weise sog. ΔE - E_{Rest} -Diagramme, wobei der Energieverlust ΔE über der ersten Anodenhälfte gegen den Energieverlust E_{Rest} über der zweiten Anodenhälfte aufgetragen ist. Die Kernladungszahl Z_T der detektierten Teilchen nimmt in dieser Auftragung nach oben hin zu. Durch die Identifikation der Ejektile kann jedem detektiertem Element separat ein Energiespektrum zugeordnet werden. Abb. 4.4(a) zeigt beispielhaft ein ΔE - E_{Rest} -Diagramm, das an einer SiC-Schicht gemessen wurde.

Mit Hilfe der Auswertungssoftware KonzERD [100] wird aus diesen Messdaten ein Tiefenprofil für die entsprechenden Atomsorten errechnet. Aus der Gesamtenergie $\Delta E + E_{Rest}$ jedes Ejektils wird hierfür die Tiefe berechnet, aus der das Teilchen stammt. Dazu werden der Energieverlust des eingeschossenen Projektils, der Energieübertrag beim Stoß und der Energieverlust des herausgeschlagenen Targetatoms beim Verlassen der Probe berücksichtigt. In Abb. 4.4(b) ist ein derartiges Tiefenpro-

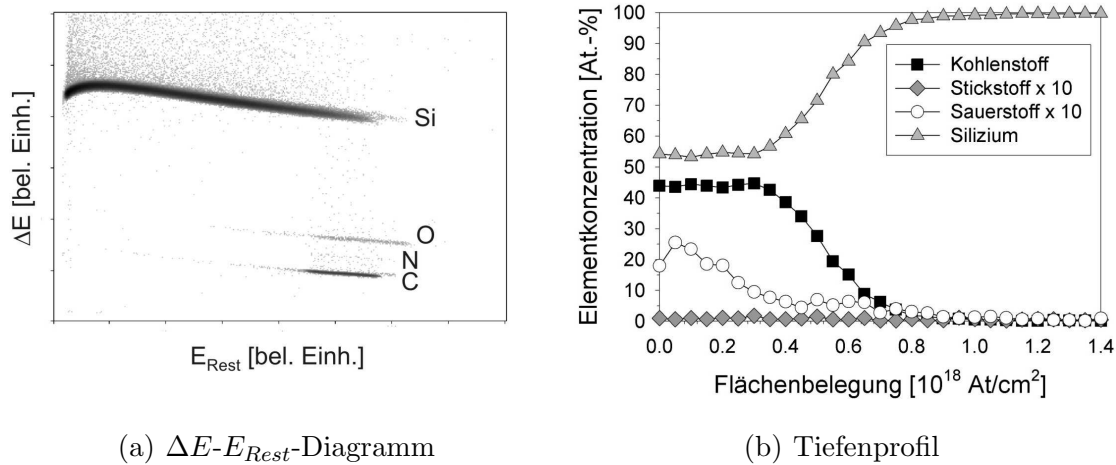


Abb. 4.4: Berechnung des Tiefenprofils aus dem ΔE - E_{Rest} -Diagramm

fil zu sehen, das aus dem in Abb. 4.4(a) dargestellten ΔE - E_{Rest} -Diagramm errechnet wurde.

Ausgewählte 3C-SiC Schichten wurden am Beschleunigerlabor in Garching mittels ERDA auf ihre chemische Zusammensetzung hin untersucht. Neben der Si:C-Stöchiometrie konnte auch die Kontamination der Proben mit Sauerstoff und Stickstoff überprüft werden, die aus dem Restgas in der UHV-Kammer während der Schichtdeposition resultiert. Für die Messungen wurde ein 210 MeV Au¹⁵⁺-Ionenstrahl verwendet. Der Einfallswinkel betrug 19°, der Streuwinkel 37,6°.

4.3 Röntgendiffraktometrie

Die Röntgenstrahlbeugung (X-Ray Diffraction, XRD) ermöglicht die Untersuchung von Struktur und Textur kristalliner Proben.

4.3.1 Beugungsbedingung

Trifft Röntgenstrahlung auf die Atome im Kristallgitter, so werden die Elektronen der Atomhülle zu Schwingungen mit derselben Frequenz wie die der einfallenden Strahlung angeregt. Infolgedessen senden sie selbst Sekundärstrahlung mit dieser Frequenz aus. Die Atome des Kristallgitters stellen folglich für die einfallende Röntgenstrahlung eine räumlich periodische Anordnung von Streuzentren dar. Die ausgesendete Sekundärstrahlung interferiert in den meisten Richtungen destruktiv, in einigen bestimmten Richtungen jedoch konstruktiv.

Im Falle konstruktiver Interferenz ist die Laue-Gleichung

$$\Delta \vec{k} = \vec{k}' - \vec{k}_0 = \vec{G} \quad |\vec{k}_0| = |\vec{k}'| \quad \text{elastische Streuung} \quad (4.9)$$

erfüllt. Ein Röntgenreflex tritt also genau dann auf, wenn der Streuvektor $\Delta \vec{k}$, der definiert ist als Differenz des Wellenzahlvektors \vec{k}' der gestreuten Welle und \vec{k}_0 der einfallenden Welle, gleich einem beliebigen reziproken Gittervektor \vec{G} ist.

Im reziproken Gitter wird Gl. 4.9 durch die Ewald-Konstruktion geometrisch veranschaulicht. Hierbei wird der Wellenzahlvektor \vec{k}_0 der einfallenden Welle mit der Spitze auf den Ursprung des reziproken Gitters gesetzt. Danach wird um den Anfangspunkt A des Vektors eine Kugel mit dem Radius $|\vec{k}_0|$ beschrieben. Für alle auf der Kugel liegenden reziproken Gitterpunkte ist die Beugungsbedingung $\Delta \vec{k} = \vec{G}$ erfüllt.

Der reziproke Gittervektor $\vec{G}(h_1 h_2 h_3) = h_1 \vec{b}_1 + h_2 \vec{b}_2 + h_3 \vec{b}_3$ steht senkrecht auf der Ebene $(h_1 h_2 h_3)$ im realen Gitter. Daher kann die gebeugte Welle \vec{k}' auch als von der Gitterebene $(h_1 h_2 h_3)$ reflektiert betrachtet werden.

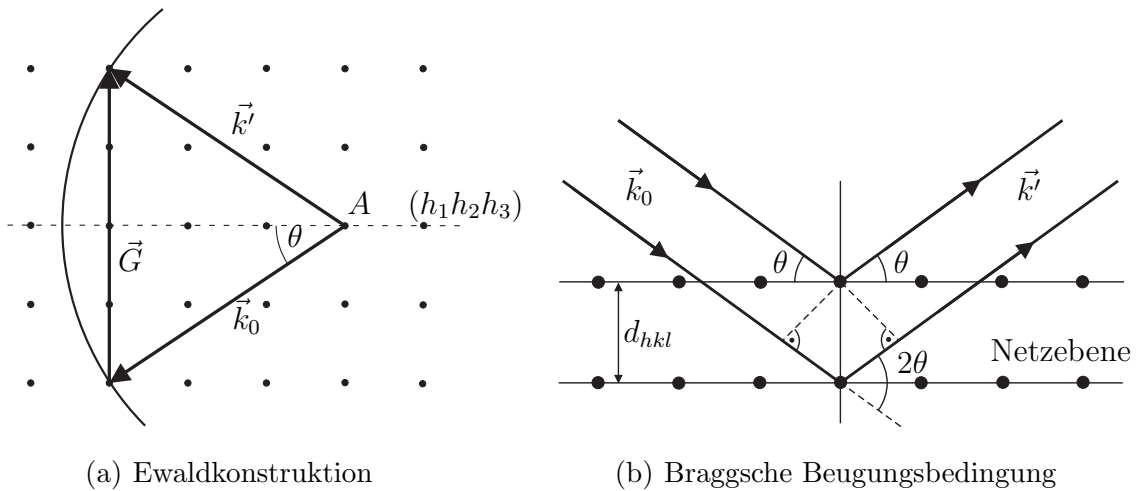


Abb. 4.5: Darstellung der Beugungsbedingungen im reziproken Raum (a) und im realem Raum (b)

Für den Winkel θ in Abb. 4.5(a) gilt :

$$\sin \theta = \frac{\frac{1}{2} |\vec{G}(h_1 h_2 h_3)|}{|\vec{k}_0|} \quad (4.10)$$

Unter Verwendung der teilerfremden Millerschen Indizes (hkl) erhält man

$$2|\vec{k}_0| \sin \theta = n |\vec{G}(hkl)| \quad (4.11)$$

Es ist zu beachten, dass reziproke Gittervektoren mit dem gemeinsamen Teiler n Interferenzen höherer Ordnung entsprechen. Der Gitterabstand d_{hkl} der mit den Millerschen Indizes (hkl) indizierten Netzebenen ist gegeben durch

$$d_{hkl} = \frac{2\pi}{|\vec{G}(hkl)|} \quad (4.12)$$

Mit dem Zusammenhang zwischen Wellenzahlvektor \vec{k}_0 und Wellenlänge λ der einfallenden Röntgenstrahlung

$$|\vec{k}_0| = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (4.13)$$

erhält man aus Gl. 4.11 und Gl. 4.12 die Braggsche Beugungsbedingung [101]

$$2d_{hkl} \sin \theta = n\lambda, \quad (4.14)$$

wobei θ den Braggwinkel und n die Beugungsordnung bezeichnet. Diese Gleichung spiegelt die Verhältnisse in Abb. 4.5(b) wider. Es wird angenommen, dass die einfallende Röntgenstrahlung an den Netzebenen des kristallinen Festkörpers teilweise reflektiert wird. Konstruktive Interferenz wird genau dann beobachtet, wenn der Gangunterschied zwischen den einzelnen Teilwellen ein ganzzahliges Vielfaches der Wellenlänge λ ist.

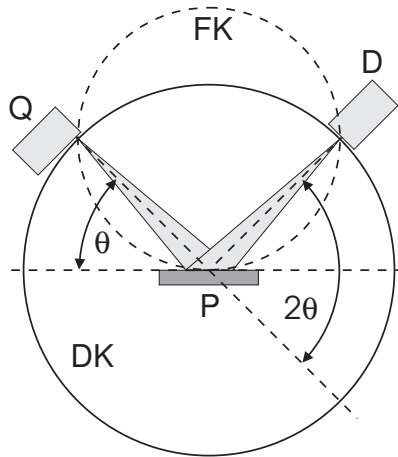
Eine umfassende Darstellung der Theorie zur Röntgenbeugung findet sich in [102–104].

Zur röntgenographischen Charakterisierung der SiC-Schichten wurde im Rahmen dieser Arbeit mit zwei unterschiedlichen Beugungsgeometrien gearbeitet. Die nachfolgenden Abschnitte 4.3.2 und 4.3.3 geben einen Überblick über die wichtigsten Eigenschaften der beiden verwendeten experimentellen Anordnungen.

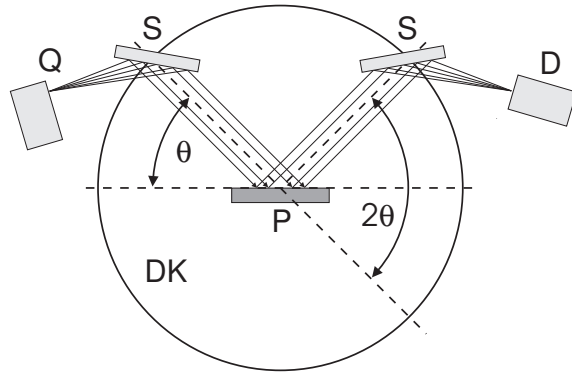
4.3.2 Messung in Bragg-Brentano-Geometrie

In der Bragg-Brentano-Geometrie [105, 106] (s. Abb. 4.6(a)) befindet sich die Probe im Mittelpunkt des Detektorkreises. Die aus der fest positionierten Röntgenquelle austretende Röntgenstrahlung trifft divergent unter dem Winkel θ auf die Probe. Die gebeugte Strahlung wird unter dem Winkel 2θ zur Primärstrahlrichtung detektiert. Zur Realisierung unterschiedlicher Beugungswinkel sind Probe und Detektor beweglich angeordnet. Der Fokussierungskreis wird durch die Position des Detektors, der Fokallinie des Primärstrahls und der Probe festgelegt. Auf ihm ist die Seemann-Bohlinsche Fokussierungsbedingung [107, 108] erfüllt, gemäß der alle Strahlen des

divergenten Primärstrahlenbündels von der Probe auf einen Punkt des Detektorkreises gebeugt werden.



(a) Bragg-Brentano-Geometrie



(b) Parallelstrahlgeometrie

Abb. 4.6: Beugungsgeometrien (a) Bragg-Brentano-Geometrie mit Probe P im Zentrum des Detektorkreises DK. Die Röntgenquelle Q ist fest positioniert. Der Detektor D registriert die gebeugte Röntgenstrahlung unter dem Winkel 2θ gegenüber der Primärstrahlrichtung. Auf dem Fokussierungskreis FK ist die Seemann-Bohlinsche Fokussierungsbedingung erfüllt. (b) Parallelstrahlgeometrie mit primär- und sekundärseitigem Göbelspiegel S.

Für die Messungen in dieser Beugungsgeometrie wurde ein *Siemens D5000* Röntgendiffraktometer verwendet, das mit einem Vierkreisgoniometer und offener Eulerwiege ausgestattet ist. Abb. 4.7 zeigt eine schematische Darstellung der Anordnung mit den Winkelbezeichnungen der vier Goniometerkreise.

Als Röntgenquelle dient eine wassergekühlte Röntgenröhre mit Kupferanode und einer Betriebsleistung von 1,2 kW. Durch eine röhrenförmige Lochblende wird die Divergenz der austretenden Röntgenstrahlung auf ca. $0,3^\circ$ [109] begrenzt. Die gebeugte Strahlung gelangt durch eine variable horizontale und vertikale Blende in einen sekundärseitigen Graphitmonochromator, der aus dem Spektrum der Cu-Röntgenröhre das intensitätsstarke $\text{CuK}\alpha$ -Dublett ($\lambda_{K\alpha 1} = 1,5405 \text{ \AA}$ und $\lambda_{K\alpha 2} = 1,5444 \text{ \AA}$) selektiert. Die transmittierte Strahlung wird von einem Szintillationszähler detektiert. Die Wahl der sekundärseitigen Blenden bestimmt die Auflösung der Messanordnung.

Über den ω -Kreis wird die Probe relativ zum einfallenden Strahl positioniert. Der θ -Kreis bewegt den Detektor in der Diffraktionsebene. Die im Mittelpunkt des Goniometers befindliche Probe kann mit Hilfe der Kreise χ und ϕ um zwei weitere Achsen rotiert werden, wodurch sich beliebige Netzebenenscharen in Reflexionsstel-

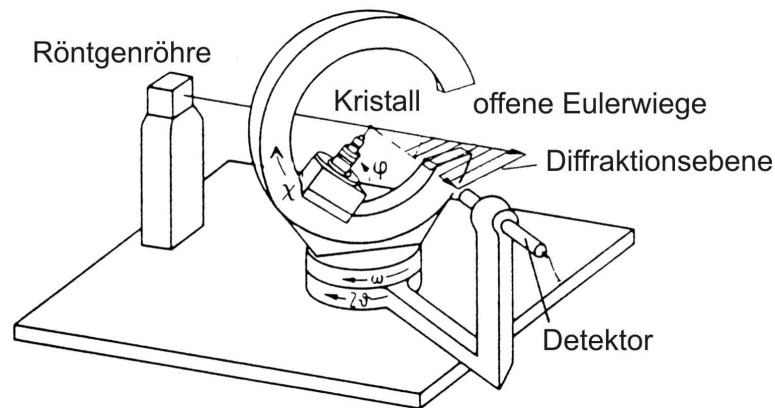


Abb. 4.7: Diffraktometer mit Vierkreisgoniometer und offener Eulerwiege nach [109]

lung bringen lassen. Die Drehung um den Polarwinkel χ ist eine Drehung um eine Achse senkrecht zur Ebene der Eulerwiege durch ihren Mittelpunkt. Die Rotation der Probe um den Azimutwinkel ϕ bewirkt eine Drehung um die durch die Mitte der Eulerwiege verlaufenden Probenachsennormalen.

Im nachfolgenden sollen die in dieser Arbeit verwendeten Messmodi kurz erläutert werden :

θ -2 θ -Scan

Beim θ -2 θ -Scan wird der Detektor bei einem Winkel 2θ gegenüber der Primärstrahlrichtung positioniert. Es erfolgt eine Drehung der Probe um die ω -Achse mit $\omega = \theta$, während der Detektor simultan im gleichen Drehsinn mit doppelter Winkelgeschwindigkeit auf die neue 2θ -Position verfahren wird. Netzebenenscharen, deren Normalenvektor parallel zur Winkelhalbierenden von einfallendem und gebeugtem Strahl liegt, führen, wenn die Braggsche Beugungsbedingung erfüllt ist, dazu, dass gebeugte Röntgenstrahlung auf den Detektor trifft. Aus dem 2θ -Wert des Intensitätsmaximums kann mittels Gl. 4.14 der zugehörige Netzebenenabstand berechnet werden.

Polfigurmessung

Zur Texturanalyse mittels Polfigurmessung wird der Beugungsreflex einer gewünschten Netzebenenschar (hkl) ($\theta = 2\Theta_{hkl}$ und $\omega = \Theta_{hkl}$) fest eingestellt. Anschließend wird der Polarwinkel χ (0° - 90°) und der Azimutwinkel ϕ (0° - 360°) schrittweise variiert und die Intensität der reflektierten Röntgenstrahlung an allen durchlaufenen Rasterpunkten gemessen. Man erhält auf diese Weise die Häufigkeitsverteilung der

zugehörigen Netzebenennormalen im Raum, die sog. Poldichteverteilung auf der Polkugel. Der Volumenanteil der unter einem bestimmten (ϕ, χ) -Winkelpaar beugenden Kristallite in der untersuchten Probe ist proportional zur gemessenen Intensität an diesem Rasterpunkt. Basierend auf dieser Tatsache kann aus der aufgenommenen Poldichteverteilung auf die Orientierungsverteilung der Kristallite in der Probe geschlossen werden. Üblicherweise wird die Polfigurmessung in Form einer stereographischen Projektion dargestellt, wobei als Projektionszentrum der Südpol der Polkugel dient.

Mit Hilfe von Polfigurmessungen lässt sich auch die Orientierungsbeziehung (Epitaxiebeziehung) zwischen Substrat und einer darauf gewachsenen Schicht bestimmen. Zu diesem Zweck werden Polfiguren an geeigneten Substrat- und Schichtreflexen aufgenommen und diese zueinander in Bezug gesetzt.

Rockingkurve

Die Rockingkurve (ω -Scan) dient zur polaren Texturbestimmung. Das Diffraktometer wird so eingestellt, dass der Reflex einer bestimmten Netzebenenschar (hkl) in den Detektor fällt. Der Detektor wird bei diesem 2θ -Winkel in der Position fixiert und die Probe bei $\omega = \theta$ leicht in beiden Drehrichtungen um die ω -Achse gedreht. Die so gemessene Intensitätsverteilung spiegelt die Verkipfung der Kristallite um eine bestimmte Achse wider. Die Halbwertsbreite des ω -Scans ist ein Maß für die Streuung der Normalenrichtungen der (hkl)-Netzebenen um die Vorzugsorientierung.

4.3.3 Messung in Parallelstrahlgeometrie

Für XRD-Untersuchungen in Parallelstrahlgeometrie wurde die in Abb. 4.6(b) schematisch dargestellte Anordnung mit zwei Göbelspiegeln verwendet.

Letztgenannte Röntgenspiegel bestehen aus einem parabelförmigen Vielschichtsystem, in dem sich Schichten mit großem und geringen Streuvermögen für Röntgenstrahlung abwechseln [110]. Die Einzelschichtdicken betragen dabei nur einige Nanometer. Für die Röntgenbeugung an einem derartigen System ist der Abstand d in der Braggschen Beugungsbedingung (s. Gl. 4.14) durch den Schichtabstand im Multilayer bestimmt. Trifft divergente Röntgenstrahlung vom Brennpunkt der formbestimmenden Parabel auf das Vielschichtsystem, so wird der in der Diffraktionsebene liegende divergente Anteil in einen Parallelstrahl umgewandelt. Ein Gradient in den Schichtabständen sorgt dafür, dass über den gesamten Spiegel hinweg die Braggsche Beugungsbedingung nur für eine bestimmte Wellenlänge erfüllt ist, wobei der lokale

Einfallswinkel der Röntgenstrahlung berücksichtigt wird. Dies führt zu einer zusätzlichen Monochromatisierung der einfallenden Strahlung.

Die XRD-Messungen in Parallelstrahlgeometrie wurden an einem *Seifert 3003 PTS* Diffraktometer durchgeführt. Es besitzt ein Vierkreisgoniometer, das im wesentlichen der Abb. 4.7 entspricht. Lediglich die Verkippung der Probe um den Polarwinkel χ erfolgt nicht über eine Eulerwiege sondern über einen speziellen Hebelarm. Die verwendeten Göbelspiegel bestehen aus einem Wolfram-Silizium-Multilayer und beschränken die Strahldivergenz auf $0,03^\circ$. Bei der Röntgenquelle handelt es sich um eine Cu-Röntgenröhre mit einer Betriebsleistung von 1,6 kW. Die divergent austretende Röntgenstrahlung trifft auf den primärseitigen Göbelspiegel, der einen CuK_α -Dublett-Parallelstrahl in der Diffraktionsebene liefert. Ein zweiter sekundärseitiger Göbelspiegel vor dem Szintillationsdetektor dient als Analysator. Mit dieser Anordnung lässt sich eine Winkelauflösung von $0,06^\circ$ erreichen.

An ausgewählten SiC-Schichten wurden θ - 2θ -Beugungsdiagramme und Rockingkurven in Parallelstrahlgeometrie gemessen. Zur Funktionsweise dieser Messmodi sei an dieser Stelle auf Abschnitt 4.3.2 verwiesen. Der für diese Arbeit entscheidende Vorteil gegenüber der Bragg-Brentano-Geometrie ist der beträchtliche Intensitätsgewinn, der durch Kollimation des Primärstrahls mit Hilfe eines Göbelspiegels erreicht wird. Dadurch konnten auch Messungen an sehr dünnen SiC-Schichten erfolgreich durchgeführt werden, die in Bragg-Brentano-Geometrie überhaupt nicht oder nur mit sehr schlechtem Signalrauschverhältnis und geringer Auflösung möglich gewesen wären.

Ein weiterer konzeptioneller Unterschied zwischen den beiden Beugungsgeometrien ist die Empfindlichkeit bezüglich der Probenpositionierung. In der parafoкусierenden Bragg-Brentano-Geometrie ist eine korrekte Höhenjustage äußerst wichtig. Ist die Probe um Δz von der Mitte des Detektorkreises mit Radius R zur Röntgenröhre hin versetzt, so verschiebt sich ein Reflex von 2θ nach $2\theta + \alpha$, wobei $\sin(\alpha) = 2\frac{\Delta z}{R} \cos(\theta)$ gilt [111]. Ein Versatz der Probe von der Röntgenröhre weg hat eine entsprechende Verschiebung des Reflexes zu kleineren Beugungswinkeln zur Folge. Die Parallelstrahlgeometrie ist gegenüber derartigen Justageabweichungen unempfindlich.

4.4 RHEED-Untersuchungen

Die Elektronenbeugung unter streifendem Einfall (Reflection High Energy Electron Diffraction, RHEED) ist ein bewährtes Werkzeug zur in-situ Charakterisierung des

Wachstums kristalliner Schichten. Die Form und Anordnung der Reflexe im Beugungsbild ermöglicht Aussagen über die Morphologie und kristalline Struktur des oberflächennahen Bereichs der untersuchten Probe. Gitterkonstanten können vermessen und kristallographische Orientierungen bestimmt werden.

Zeitaufgelöste RHEED-Messungen gestatten nicht nur eine genaue Analyse des Schichtwachstums, sie dienen auch als Werkzeug zur Prozesskontrolle.

4.4.1 Entstehung eines RHEED-Beugungsbildes

Abb. 4.8 zeigt eine schematische Darstellung der RHEED-Beugungsgeometrie. Ein Elektronenstrahl mit der Energie E_0 und dem Wellenzahlvektor k_0 trifft unter streifendem Einfall mit dem Inzidenzwinkel θ auf die zu untersuchende Probe und wird am oberflächennahen Bereich des Kristallgitters gebeugt. Das Beugungsbild kann am gegenüberliegenden Fluoreszenzschirm beobachtet werden. Die Primärenergie der Elektronen liegt typischerweise im Bereich von 10 keV bis 50 keV. Durch den geringen Einfallswinkel θ von $0,5^\circ$ bis 5° beträgt die mittlere Eindringtiefe der Elektronen senkrecht zur Oberfläche nur wenige Atomlagen. Aufgrund dieser Tatsache handelt es sich bei RHEED um eine sehr oberflächensensitive Analysemethode.

Die wesentlichen Strukturen der RHEED-Beugungsbilder lassen sich im Rahmen der kinematischen Streutheorie beschreiben. Beugungsreflexe ergeben sich, wenn die Laue-Gleichung

$$\vec{k}' - \vec{k}_0 = \vec{G} \quad (4.15)$$

erfüllt ist. Dabei bezeichnen \vec{k}_0 und \vec{k}' den Wellenzahlvektor des einfallenden und gestreuten Elektronenstrahls und \vec{G} einen reziproken Gittervektor.

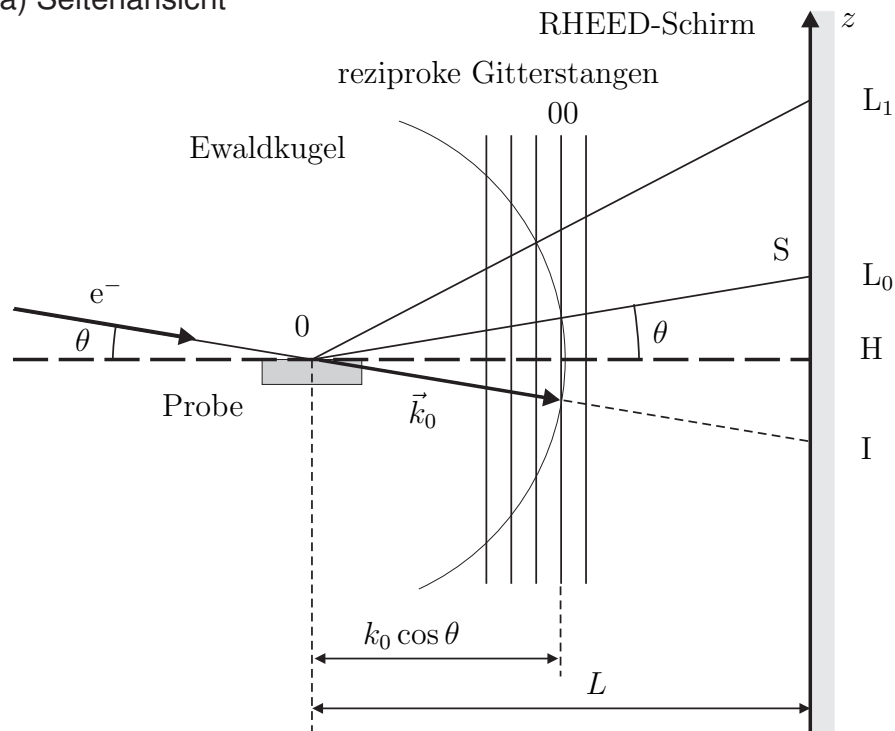
\vec{k}_0 ist für hochenergetische relativistische Elektronen gegeben durch

$$k_0 = \frac{1}{\hbar} \sqrt{2m_0 E_0 + \frac{E_0^2}{c^2}} \quad (4.16)$$

worin m_0 die Elektronenruhemasse, c die Lichtgeschwindigkeit und E_0 die Primärenergie der Elektronen ist.

Für die elastisch gestreuten Elektronen $|\vec{k}'| = |\vec{k}_0|$ der kinematischen Streutheorie lassen sich die durch Gl. 4.15 bestimmten Beugungsbilder durch die Ewald-Konstruktion (s. Abschnitt 4.3.1) im reziproken Raum bestimmen. Aufgrund der geringen Eindringtiefe der Elektronen kann die Periodizität des beugenden Volumens senkrecht zur Oberfläche für gewöhnlich vernachlässigt werden. Die Beugung findet somit im wesentlichen am zweidimensionalen Oberflächengitter statt.

(a) Seitenansicht



(b) Aufsicht

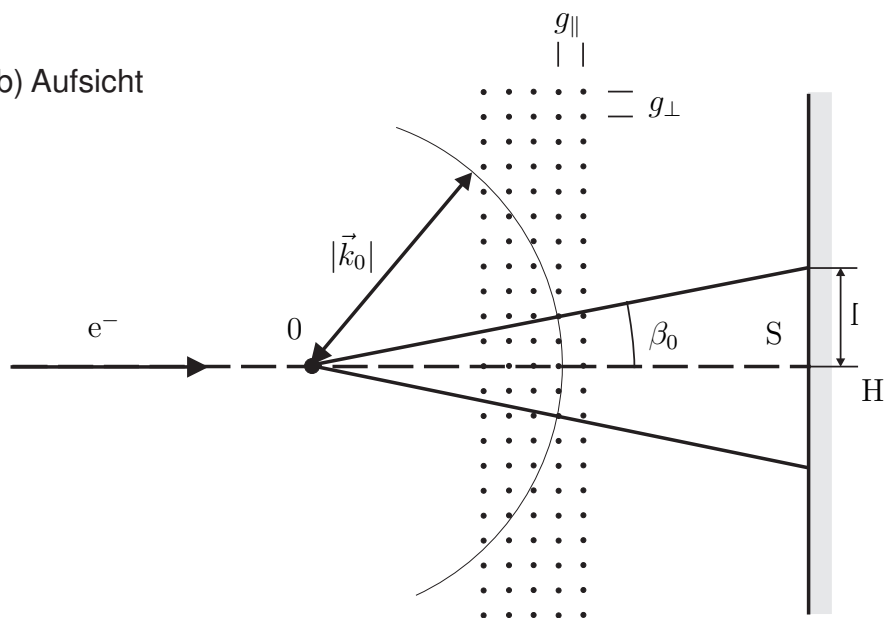


Abb. 4.8: RHEED-Beugungsgeometrie und Ewald-Konstruktion nach [112]; Intensitätsmaxima am RHEED-Schirm entsprechen den projizierten Schnittpunkten zwischen Ewaldkugel und reziprokem Gitter.

Das reziproke Gitter einer idealen kristallinen Oberfläche ist durch eine periodische Anordnung von Gittergeraden gegeben, die senkrecht auf der Festkörperoberfläche im Ortsraum stehen. In der Ewald-Konstruktion durchstoßen die Gittergeraden die Ewaldkugel unter kleinem Winkel, und die Schnittpunkte ergeben die Beugungsreflexe. Abb. 4.8 zeigt eine schematische Darstellung der Situation. Man erhält ein RHEED-Beugungsbild, in dem punktförmige Beugungsreflexe auf sog. Lauekreisen mit Radius L_n und Mittelpunkt H liegen.

Die Linie am Fluoreszenzschirm, die die Grenze zum Bereich bildet, in dem aufgrund der geometrischen Anordnung der Probe kein Beugungsreflex mehr beobachtet werden kann, wird als Schattenkante bezeichnet. Der Spiegelreflex S befindet sich am Schnittpunkt des Lauekreises nullter Ordnung L_0 mit der (00)-Gittergeraden. Der Ursprung des reziproken Gitters wird auf den Punkt I projiziert, der als (000)-Reflex bezeichnet wird. Zu beobachten ist er, wenn ein Teil des einfallenden Elektronenstrahls nicht auf die Probe sondern direkt auf den RHEED-Schirm trifft.

Die verbleibenden Reflexe im Beugungsbild werden nach der reziproken Gittergeraden bezeichnet, die sie aufgenommen haben. Da die Gittervektoren der Oberfläche gewöhnlich nicht mit den Gittervektoren im Volumen übereinstimmen, besteht in der Nomenklatur kein direkter Zusammenhang zu den Miller-Indizes im Festkörper. Liegt eine Oberflächenrekonstruktion vor, so werden zur Bezeichnung der Reflexe des Übergitters gebrochenzahlige Indizes verwendet.

Anhand einfacher geometrischer Betrachtungen können die Abstände der reziproken Gittergeraden g_{\parallel} (parallel zum einfallenden Strahl) und g_{\perp} (senkrecht zum einfallenden Strahl) aus der Lage l des RHEED Reflexes und dem Abstand L zwischen Probe und Schirm bestimmt werden.

$$ng_{\parallel} = k_0 \left[\cos \theta - \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{L_n}{L}\right)^2 + 1}} \right] \quad (n \in \mathbb{N}) \quad (4.17)$$

$$ng_{\perp} = \frac{k_0}{\sqrt{\left(\frac{L}{nl}\right)^2 + 1}} \quad (n \in \mathbb{N}) \quad (4.18)$$

Für kleine Winkel ($nl \ll L$) gilt näherungsweise

$$ng_{\perp} = \frac{nl}{L} k_0 \quad (n \in \mathbb{N}) \quad (4.19)$$

In der oben geschilderten Ewald-Konstruktion ist zu beachten, dass die reziproken Gittergeraden nur für eine ideale Kristalloberfläche mit unendlicher Ausdehnung als

infinitesimal dünn angenommen werden können. Da in der Praxis der einfallende fokussierte Elektronenstrahl nur einen begrenzten Ausschnitt der Oberfläche erfasst, sind die reziproken Gittergeraden stets in geringem Maße zu elliptischen Zylindern verbreitert (instrumentelle Verbreiterung) [113].

Befinden sich strukturelle Defekte an der Oberfläche oder im oberflächennahen Bereich, wie z.B. Korngrenzen, Fremdphasen oder schwache Stufenbildung, so führt dies zu einer wesentlichen Verkleinerung der zusammenhängenden kristallographisch perfekten Bereichen auf der Oberfläche und damit zu einer deutlichen Zunahme der Aufweitung der reziproken Gitterstäbe [114]. In der Ewald-Konstruktion (s. Abb. 4.9) ergeben sich somit langgezogene Schnittflächen, wodurch das Beugungsbild streifenförmige Reflexe, sog. Streaks, zeigt, die senkrecht zur beugenden Festkörperoberfläche orientiert sind.

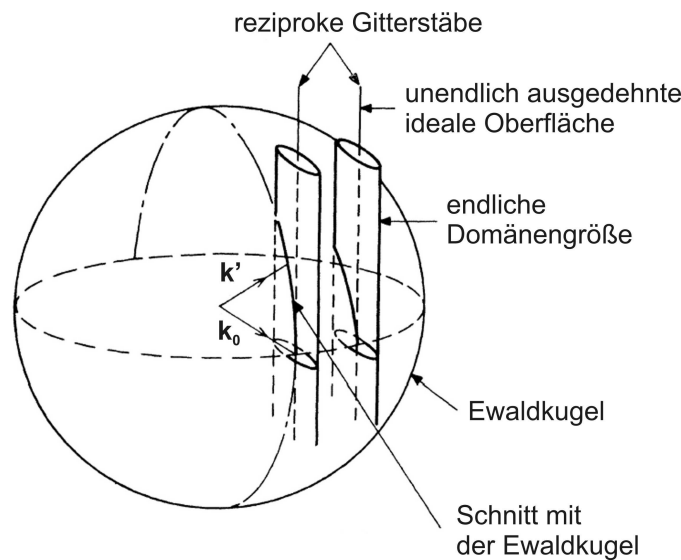


Abb. 4.9: Schnitt der aufgeweiteten reziproken Gitterstäbe (elliptische Zylinder) mit der Ewaldkugel [114]

Aus dem Abstand t der Streaks im Beugungsbild kann die Gitterkonstante d_{\parallel} parallel zur Elektronenstrahlrichtung bestimmt werden. Es gilt

$$d_{\parallel} \cdot t = L \cdot \lambda_0 \quad (4.20)$$

wobei λ_0 die Wellenlänge des einfallenden Elektronenstrahls und L den Abstand zwischen Probe und RHEED-Schirm bezeichnet. Eine exakte Messung der benötigten Größen auf der rechten Seite von Gl. 4.20 ist jedoch nur schwer möglich. Zur Kalibrierung der RHEED-Analytik wird deshalb das Produkt $L \cdot \lambda_0$ anhand einer Probe mit bekannter Gitterkonstante d_{\parallel} und gemessenen Streakabstand t gemäß

Gl. 4.20 berechnet.

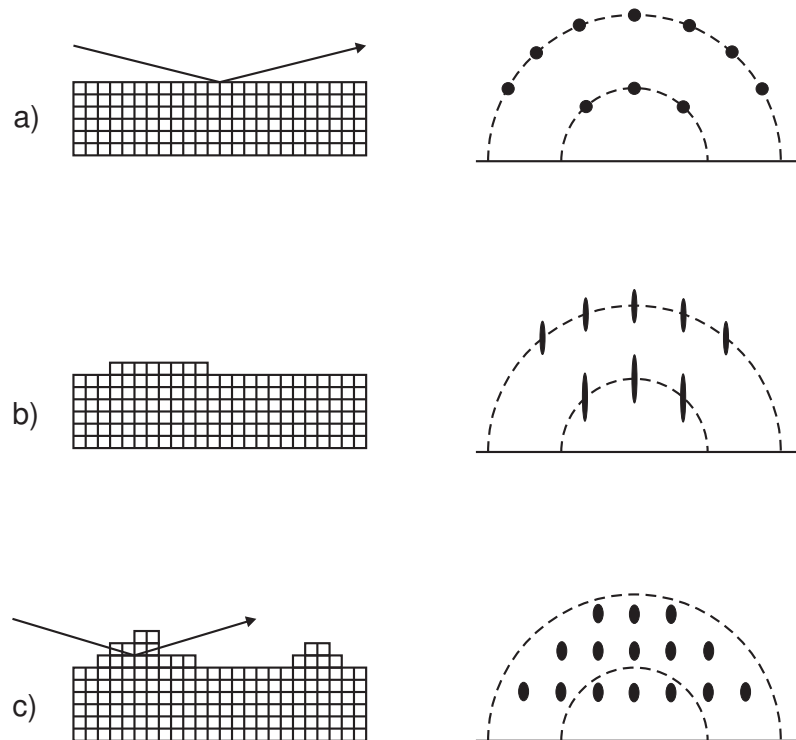


Abb. 4.10: Abhängigkeit der RHEED-Beugungsbilder von der Oberflächenbeschaffenheit. (a) ideale glatte Oberfläche (b) Oberfläche mit begrenzten kristallographisch perfekten Bereichen, z.B. durch schwache Stufenbildung (c) Oberfläche mit Rauigkeiten, z.B. durch Inselwachstum. Bei definierter Orientierung der durchstrahlten 3D-Strukturen sind punktförmige Beugungsreflexe zu beobachten. Existiert keine Vorzugsorientierung, so zeigt das Beugungsbild Ringe.

Weist die untersuchte Probe Rauigkeiten wie Inseln, starke Stufenbildung oder Löcher auf, so führt dies zu einer Beugung der Elektronen am dreidimensionalen Kristallgitter. Der streifende Einfall und die hohe Energie des Elektronenstrahls ermöglichen die Durchstrahlung von stark in Normalenrichtung hervorstehenden Strukturen. In der Ewald-Konstruktion ergeben sich die Beugungsreflexe als Schnitt eines dreidimensionalen reziproken Punktgitters mit der Ewaldkugel. Das RHEED-Beugungsbild zeigt somit bei definierter Orientierung der 3D-Strukturen punktförmige Beugungsreflexe, die sich in diesem Fall nicht auf Lauekreisen befinden, sondern entsprechend der Symmetrie der beugenden Kristallite angeordnet sind.

Es sei darauf hingewiesen, dass die Form der Beugungsreflexe durch die Form der durchstrahlten 3D-Strukturen bestimmt wird. Entsprechend den Abmessungen der Objekten kommt es auch hier zur Verbreiterung der reziproken Gitterpunkte parallel oder senkrecht zur Festkörperoberfläche [115, 116].

Besitzen die durchstrahlten 3D-Strukturen keine Vorzugsorientierung, so ergeben

sich im RHEED-Beugungsbild Ringe. Die Elektronen werden an den Kristalliten, für die zufällig die Braggbedingung erfüllt ist, gebeugt. Die zu einem bestimmten (hkl)-Reflex gehörenden gebeugten Strahlen liegen dabei auf einem Kegelmantel, mit dem einfallenden Strahl als Rotationsachse. Kegelschnitte mit der RHEED-Schirm-Ebene liefern die besagte Form des Beugungsbildes.

In der vorliegenden Arbeit wurden RHEED-Messungen während des 3C-SiC Schichtwachstums auf Si(001)-Substraten und 3C-SiC(001)-Pseudosubstraten durchgeführt. Abb. 3.5 zeigt eine schematische Darstellung der Integration des RHEED-Systems in die UHV-Apparatur zur Schichtherstellung. Die verwendete Elektronenkanone *Staib EK-35R* ist für einen Energiebereich von 1 keV bis 30 keV ausgelegt. Das elektronenoptische System erlaubt eine Einstellung von Strahldivergenz und Strahldurchmesser. Die am RHEED-Schirm sichtbaren Beugungsbilder werden mit Hilfe einer hochauflösenden peltiergeköhlten CCD-Kamera mit variabler Belichtungszeit aufgenommen und können am PC weiterverarbeitet und ausgewertet werden. Die zur Messung notwendige Positionierung der Probe relativ zum Elektronenstrahl erfolgt über einen drehbaren Manipulator.

Alle Messungen wurden mit einer Primärenergie von 30 keV durchgeführt. Der Filamentstrom betrug dabei 1,5 A.

4.4.2 Streutheorie

Ergänzend zu den überwiegend geometrischen Betrachtungen in Abschnitt 4.4.1 soll nun die kinematische Streutheorie [112, 117] näher betrachtet werden. Bei diesem Ansatz zur Elektronenbeugung wird angenommen, dass die Atome des Kristallgitters als unabhängige Streuzentren wirken und nur elastische Streuung stattfindet. Ferner wird vorausgesetzt, dass nur eine geringe Wechselwirkung der einfallenden Strahlung mit den Streuzentren besteht, so dass keine Mehrfachstreuung auftritt. Die kinematische Streutheorie stellt eine relativ einfache Methode zur Auswertung von RHEED-Bildern dar. Eine vollständige Erklärung der Beugungsbilder vermag sie aber wegen der zugrunde liegenden Vereinfachungen nicht zu leisten. Die exakte dynamische Streutheorie berücksichtigt auch inelastische und Vielfach-Streuprozesse, ist jedoch mit einem enormen Rechenaufwand verbunden.

Ausgangspunkt für die Betrachtungen zur kinematischen Streutheorie ist die Schrödinger-Gleichung, die für kleine relativistische Korrekturen in der nachfolgenden

Form gültig ist:

$$[\nabla^2 + U(\vec{r}) + k_0^2] \psi(\vec{r}) = 0 \quad (4.21)$$

\vec{k}_0 bezeichnet dabei den (relativistischen) Wellenzahlvektor des einfallenden Elektronenstrahls. Das normierte Gitterpotential $U(\vec{r})$ ist gegeben durch

$$U(\vec{r}) = \frac{2me}{\hbar^2} V(\vec{r}) \quad (4.22)$$

wobei m die (relativistische) Elektronenmasse, e die Elementarladung und $eV(\vec{r})$ die potentielle Energie eines Elektrons im Kristallgitter ist. Es sollen nur elastische Streuprozesse mit $|\vec{k}_0| = |\vec{k}'|$ betrachtet werden, wobei \vec{k}' den Wellenzahlvektor des gestreuten Elektronenstrahls bezeichnet. Gl. 4.21 kann damit in integraler Form geschrieben werden.

$$\psi(\vec{r}) = \exp(i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}) + \int G(\vec{r}, \vec{r}') U(\vec{r}') \psi(\vec{r}') d\vec{r}' \quad (4.23)$$

Der erste Term stellt die einfallende ebene Welle dar, die gestreute Welle wird durch das nachfolgende Integral bestimmt. Die Green Funktion $G(\vec{r}, \vec{r}')$ ist gegeben durch

$$G(\vec{r}, \vec{r}') = \frac{\exp(ik_0|\vec{r} - \vec{r}'|)}{4\pi|\vec{r} - \vec{r}'|} \quad (4.24)$$

Um eine grobe Abschätzung für den Streuquerschnitt zu erhalten, wird das Potential eines Atoms mit der Kernladungszahl Z durch ein Coulomb-Potential mit Thomas-Fermi-Abschirmung genähert

$$V(r) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r} \exp\left(-\frac{r}{a}\right) \quad (4.25)$$

wobei für die Abschirmlänge gilt

$$a = \frac{4\pi\epsilon_0\hbar^2}{me^2 Z^{1/3}} \quad (4.26)$$

In der Bornschen Näherung erhält man für den Streuquerschnitt σ

$$\sigma = \frac{16\pi m^2 e^4}{\hbar^4 (4\pi\epsilon_0)^2} \frac{Z^2 a^4}{4k^2 a^2 + 1} \quad (4.27)$$

Ausgehend von Gl. 4.23 kann die Wellenfunktion im Kristall durch die einfallende ebene Welle angenähert werden, woraus sich ein Ausdruck identisch zur Störungs-

theorie erster Ordnung ergibt. Für die gestreute Welle erhält man

$$\psi(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi} \int \frac{\exp(ik|\vec{r} - \vec{r}'|)}{|\vec{r} - \vec{r}'|} U(\vec{r}') \exp(i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}') d\vec{r}' \quad (4.28)$$

und die Amplitude für die Streuung in Richtung \vec{k}' ist gegeben durch

$$F(\vec{k}_0 - \vec{k}') = \frac{1}{4\pi} \int \exp \left[i \left(\vec{k}_0 - \vec{k}' \right) \cdot \vec{r}' \right] U(\vec{r}') d\vec{r}' \quad (4.29)$$

Das Streupotential $V(\vec{r})$ lässt sich als Summe der Beiträge einzelner Atome ausdrücken

$$V(\vec{r}) = \sum_i \phi_i(\vec{r} - \vec{r}_i) \quad (4.30)$$

Durch Einsetzen der Fourier-Komponenten dieses Potentials

$$u_i(\vec{k}_0 - \vec{k}') = \int \phi_i(\vec{r}) \exp \left[i \left(\vec{k}_0 - \vec{k}' \right) \cdot \vec{r} \right] d\vec{r} \quad (4.31)$$

in Gl. 4.29 ergibt sich für die Amplitude der am Kristall gestreuten Welle in Richtung \vec{k}' :

$$F(\vec{k}_0 - \vec{k}') = \frac{me}{2\pi\hbar^2} \sum_i u_i(\vec{k}_0 - \vec{k}') \exp \left[i \left(\vec{k}_0 - \vec{k}' \right) \cdot \vec{r}_i \right] \quad (4.32)$$

Zu den wichtigsten Erscheinungen der Mehrfachstreuung, die sich nur in der dynamischen Streutheorie erklären lassen, gehören die Kikuchi-Linien und Kikuchi-Bänder. Dabei handelt es sich um helle und dunkle leicht parabolisch gekrümmte Linien im Beugungsbild. Da ihre Position empfindlich von der Orientierung des Kristalls zum einfallenden Elektronenstrahl abhängt, werden sie in der Praxis häufig dazu benutzt, um eine exakte Ausrichtung entlang einer gewünschten kristallographischen Richtung zu erreichen.

4.5 Rasterelektronenmikroskopie

Beim Rasterelektronenmikroskop (Scanning Electron Microscope, SEM) wird ein fein fokussierter Elektronenstrahl zeilenweise über die Oberfläche des zu untersuchenden Objektes gerastert. Die Wechselwirkung der einfallenden Primärelektronen mit der Probe erzeugt verschiedene Signale, deren Detektion Informationen über die Beschaffenheit des Objektes geben können. Zur Visualisierung wird die Intensität des detektierten Signals in Abhängigkeit vom Probenort dargestellt.

In dieser Arbeit wurden die vom einfallenden Elektronenstrahl erzeugten Sekundär-

elektronen (SE) zur Bilderzeugung verwendet. Sie besitzen nur geringe Energien von bis zu 50 eV und werden in einer dünnen Oberflächenschicht von wenigen Ångström Dicke durch inelastische Streuung der Primärelektronen gebildet. Der Kontrastmechanismus beruht darauf, dass in erhabenen Teilen der untersuchten Probe mehr Sekundärelektronen das Objekt verlassen können und diese Bereiche folglich heller erscheinen als benachbarte. Das SE-Signal liefert auf diese Weise ein Abbild der Proben-Topographie. Da das Volumen, in dem die SE gebildet werden, vergleichsweise klein ist, erlauben SE-Bilder eine sehr hohe Auflösung (wenige nm) [118].

Die Rasterelektronenmikroskopie diente in dieser Arbeit insbesondere auch zur Untersuchung der Hohlraumbildung im Siliziumsubstrat bei der SiC-Synthese. Bei genügend hoher Energie der Primärelektronen ist es möglich, Hohlräume im Si-Substrat auch unterhalb der geschlossenen SiC-Schicht im SE-Bild sichtbar zu machen. In Abhängigkeit von den SiC-Schichtdicken wurden Beschleunigungsspannungen im Bereich von 10-20 kV verwendet. Die detektierten Sekundärelektronen können auf zwei verschiedenen Arten entstanden sein. Die erste Kategorie (SE1) wird direkt beim Eindringen des Primärstrahls in die Oberflächenschicht generiert und liefert den beschriebenen Topographiekontrast. Die zweite Kategorie (SE2) entsteht, wenn rückgestreute Elektronen (BSE) die Randschicht ein zweites Mal durchqueren. Da diese BSE aus tieferen Bereichen der Probe stammen, erhält man zusätzliche Tiefeninformation im SE-Signal.

Alle SEM-Untersuchungen wurden am Lehrstuhl für Experimentalphysik II der Universität Augsburg durchgeführt. Das verwendete Rasterelektronenmikroskop *LEO 982 Gemini* besitzt neben einem seitlichen Everhart-Thornley SE-Detektor einen zweiten In-Lens SE-Detektor. Die maximale Beschleunigungsspannung beträgt 20 kV.

4.6 Rasterkraftmikroskopie

Zur topographischen Charakterisierung der SiC-Schichten wurde die Rasterkraftmikroskopie (Atomic Force Microscopy, AFM) verwendet.

Der Abbildungsmechanismus beruht auf der Kraftwechselwirkung zwischen der Probenoberfläche und einer Spitze, die sich am Ende eines elastischen Biegebalkens, dem sog. Cantilever, befindet. Zur Bilderzeugung wird die Spitze mit Hilfe von Piezostellerelementen (in x- und y-Richtung) über die Probenoberfläche gerastert [119].

Gemessen wurde in dieser Arbeit im dynamischen Non-Contact-Modus. Hierbei wird der Cantilever bei einer festgehaltenen Frequenz nahe seiner Resonanzfrequenz f_{res} zu Schwingungen angeregt. Die Resonanzfrequenz ergibt sich aus der Federkonstanten k und der effektiven Masse m^* des Cantilevers, welche die genaue Cantilever-

geometrie berücksichtigt [120].

$$f_{\text{res}} = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{m^*}} \quad (4.33)$$

Die Kraft F zwischen Spitze und Probe bewirkt eine Modifikation der effektiven Federkonstante k_{eff} . Für kleine Oszillationsamplituden gilt in erster Näherung [121, 122]

$$k_{\text{eff}} = k - \frac{\partial F}{\partial z} \quad (4.34)$$

Gemäß Gl. 4.33 ändert sich damit auch die Resonanzfrequenz f_{res} . Für kleine Kraftgradienten $F' = \frac{\partial F}{\partial z} \ll k$ gilt für die Resonanzfrequenzverschiebung Δf_{res}

$$\Delta f_{\text{res}} = -\frac{f_{\text{res}} F'}{2k} \quad (4.35)$$

Da die Anregungsfrequenz während der Messung festgehalten wird, führt die Verschiebung der Resonanzfrequenz zu einer Änderung der Schwingungsamplitude des Cantilevers.

Im Non-Contact-Modus befindet sich die Spitze in einem Abstand von 1 bis 10 nm von der Probenoberfläche. Die Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe wird in diesem Bereich von den attraktiven Van-der-Waals Kräften bestimmt. Bei Annäherung an die Probenoberfläche verschiebt sich die Resonanzfrequenz folglich zu kleineren Frequenzen und die Schwingungsamplitude des Cantilevers verkleinert sich bei festgehaltener Anregungsfrequenz.

Während des Rastervorgangs über die Probenoberfläche wird die Schwingungsamplitude des Cantilevers über eine Regelschleife konstant auf einen vorgegebenen Sollwert gehalten (Amplitudenmodulations-Detektion). Zu diesem Zweck kann die Spitze in z-Position über ein Piezostellelement nachgeführt werden. Aus den (x, y, z) -Koordinaten der Spitze, die während des Rastervorgangs aufgezeichnet wurden, lässt sich eine dreidimensionale Darstellung der Orte gleicher Kraft zwischen Spitze und Oberfläche erstellen, die im allgemeinen der Oberflächentopographie der untersuchten Probe entspricht.

Um die bestmögliche laterale Auflösung zu erreichen, wurden alle AFM-Untersuchungen mit einer maximalen Anzahl von 512×512 Bildpunkten im Rasterbereich durchgeführt.

Zur Quantifizierung der Oberflächenrauigkeit untersuchter SiC-Schichten wurde aus den topographischen Messdaten die sog. RMS-Rauigkeit R_{rms} [123] berechnet.

$$R_{rms} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (Z_i - \bar{Z})^2} \quad (4.36)$$

Z_i bezeichnet die z -Koordinate am i -ten Rasterpunkt, \bar{Z} den Mittelwert aller z -Koordinaten und n die Anzahl der Rasterpunkte.

4.7 Transmissionselektronenmikroskopie

Das Prinzip der Transmissionselektronenmikroskopie (Transmission Electron Microscopy, TEM) beruht auf der Wechselwirkung eines hochenergetischen Elektronenstrahls mit einer dünnen durchstrahlbaren Probe [118,124,125]. Abb. 4.11 zeigt eine schematische Darstellung des Mikroskop-Strahlengangs, der sich aus Kondensor-, Objektiv- und Projektivsystem zusammensetzt. Die wellenoptische Abbildung wird durch magnetische Linsen realisiert.

Die aus der Elektronenquelle extrahierten Elektronen werden auf Energien beschleunigt, die typischerweise im Bereich von 100 keV bis 1 MeV liegen. Mit Hilfe des Kondensorsystems wird die Probe homogen und parallel mit Elektronen bestrahlt. Ein Teil der einfallenden Elektronen durchdringt die Probe ungehindert. Die anderen werden entweder elastisch am Coulomb-Potential der Atomkerne oder inelastisch an den Elektronenhüllen der Probenatome gestreut. Bei der inelastischen Streuung erleiden die Elektronen einen elementspezifischen Energieverlust, der für die Elementanalyse genutzt werden kann. Die elastisch gestreuten Elektronen werden für die Bilderzeugung verwendet. Sie haben im Wellenbild lediglich eine Phasenänderung ohne Energieverlust erfahren. Die Objektivlinse erzeugt das erste Zwischenbild in ihrer Bildebene und ein Beugungsbild in ihrer hinteren Brennebene. Abhängig davon auf welches der beiden Bilder die Zwischenlinse fokussiert wird, liefert die Projektivlinse das vergrößerte reale Abbild der Probe oder das Beugungsbild.

Das Transmissionselektronenmikroskop gestattet unterschiedliche Betriebsmodi, die im nachfolgenden hinsichtlich der Untersuchung kristalliner Proben kurz erläutert werden sollen.

In der **Hellfeldabbildung** wird mit Hilfe der Objektivapertur nur der ungebeugte Primärstrahl zur Abbildung genutzt. Es entsteht ein Hellfeldkontrast derart, dass in Bragg-Position liegende Bereiche der Probe Intensität wegbeugen und im Bild dunkler erscheinen (Beugungskontrast).

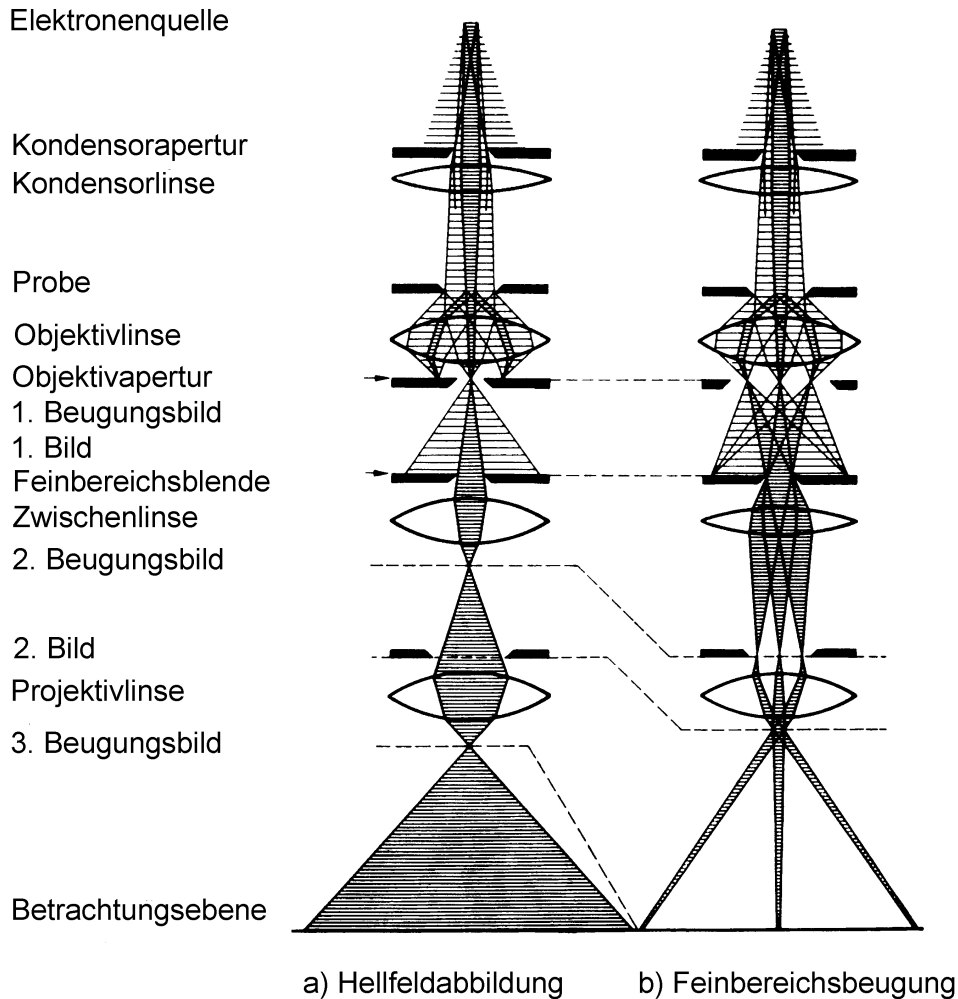


Abb. 4.11: Wellenoptischer Strahlengang im Elektronenmikroskop (a) Hellfeldabbildungsmodus: Zwischenlinse fokussiert auf 1. Bild (b) Feinbereichsbeugung: Zwischenlinse fokussiert auf 1. Beugungsbild [124]

Für eine **Dunkelfeldabbildung** wird zur Bilderzeugung ein ausgewählter (hkl)-Reflex verwendet. Hierfür wird der Primärstrahl derart verkippt, dass lediglich der gewünschte gebeugte Strahl entlang der optischen Achse durch die Objektivapertur fällt. In der Abbildung erscheinen genau die kristallinen Bereiche hell, die zur Erzeugung des (hkl)-Reflexes beitragen. Ein Vergleich mit entsprechenden Hellfeldaufnahmen der Probenstelle ermöglicht u.a. Aussagen über die Existenz und Art von Defekten.

Für die **Feinbereichsbeugung** (Selected Area Electron Diffraction, SAED) wird die Zwischenlinse auf die hintere Brennebene der Objektivlinse fokussiert. Die Projektivlinse liefert so das Beugungsbild eines begrenzten Probenbereichs, der mit Hilfe

der Feinbereichsblende selektiert werden kann. Beugungsreflexe treten genau dann auf, wenn die Laue-Gleichung

$$\vec{k}' - \vec{k}_0 = \vec{G} \quad |\vec{k}_0| = |\vec{k}'| \quad \text{elastische Streuung} \quad (4.37)$$

erfüllt ist. Dabei bezeichnen \vec{k}_0 und \vec{k}' den Wellenzahlvektor des einfallenden und gestreuten Elektronenstrahls und \vec{G} einen reziproken Gittervektor. In der Ewald-Konstruktion (s. Abschnitt 4.3.1) ergeben sich die Beugungsreflexe als Schnittpunkte des dreidimensionalen reziproken Punktgitters mit der Ewaldkugel. Aufgrund der geringen Wellenlänge der Elektronen $\lambda(300 \text{ kV}) = 1,97 \cdot 10^{-12} \text{ m}$ und dem damit verbundenen großen Radius der Ewaldkugel gleicht diese Konstruktion in der TEM einem geraden Schnitt durch den reziproken Raum.

Genügend dünne Proben gestatten die Untersuchung mittels **hochauflösender TEM** (High Resolution TEM, HRTEM). Dabei wird der einfallende Elektronenstrahl parallel zu einer niedrig indizierten Zonenachse ausgerichtet. Durch Interferenz des Primärstrahls mit den gebeugten Strahlen erster Ordnung (Phasenkontrast) erhält man eine Abbildung des Kristallgitters.

In der vorliegenden Arbeit wurden ausgewählte SiC-Schichten mittels Transmissionselektronenmikroskopie im Querschnitt untersucht. Dabei konnten umfangreiche Informationen über die Morphologie, die lokale kristalline Struktur, die Beschaffenheit der Grenzflächen und die Defektverteilung gewonnen werden. Die Messungen wurden am einem *Philips CM30* TEM mit einer Beschleunigungsspannung von 300 kV durchgeführt. Zur Querschnittspräparation wurden zunächst zwei dünne Streifen aus den Proben herausgeschnitten und an den SiC-Schichten aufeinander geklebt. Danach wurde das Schichtpaket in ein Messingtöpfchen eingebettet und mechanisch auf eine Dicke von einigen 10 μm abgedünnt. Anschließend wurde mit einem 5 keV Argonionenstrahl solange unter streifendem Einfall gesputtert bis ein Loch entstand, an dessen keilförmigen Rändern die zur Durchstrahlung notwendige Dicke erreicht war.

Kapitel 5

Heteroepitaxie von 3C-SiC-Schichten auf Si(001)

5.1 Anfangsstadium des 3C-SiC Wachstums

Ein wichtiger Aspekt der Heteroepitaxie von 3C-SiC auf Si(001) ist das Anfangsstadium des Schichtwachstums in Form von SiC-Inseln auf der Substratoberfläche. In der vorliegenden Arbeit wurde diese Frühphase des 3C-SiC-Wachstums bei Verwendung einer C₆₀-Kohlenstoffquelle mittels TEM untersucht.

Abb. 5.1 zeigt die Oberfläche eines Si(001)-Substrats, das für 60 s einem C₆₀-Fluss von $4,8 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ausgesetzt wurde. Die Probertemperatur betrug dabei 950°C. Durch die Reaktion der Kohlenstoffatome fragmentierter C₆₀-Moleküle mit Si-Oberflächenatomen haben sich in Übereinstimmung mit dem Wachstumsmodell in Abschnitt 3.3 Inseln mit 3C-SiC-Struktur gebildet. Das Wegdiffundieren von Si zur SiC-Synthese hat dabei zur Aufräumung der Si-Oberfläche geführt. Die Fast Fourier Transformation (FFT) in Abb. 5.1(a) stellt das für die betreffende Probenstelle berechnete Beugungsbild entlang [110]Si dar. Die relative Anordnung der inneren Si- und äußeren 3C-SiC-Reflexe verdeutlicht das epitaktische Wachstum mit der charakteristischen Orientierungsbeziehung

$$(001) [110] \text{ Si} \parallel (001) [110] \text{ 3C-SiC}$$

Mit den aus der Literatur bekannten Gitterkonstanten $a(\text{3C-SiC})=4,3596 \text{ \AA}$ und $a(\text{Si})=5,4309 \text{ \AA}$ für 3C-SiC bzw. Si ergibt sich die berechnete Gitterfehlانpassung an der SiC/Si-Grenzfläche zu 19,73% [49]. Die Folge dieser großen Gitterfehlانpassung ist die Formierung einer semikohärenten Grenzfläche. Der überwiegende Anteil auftretender mechanischer Spannungen wird dort durch ein Netzwerk von undissoziierten Stufenversetzungen mit einem Burgersvektor $\vec{b} = a(\text{SiC})/2\langle 110 \rangle$ abgebaut, wobei

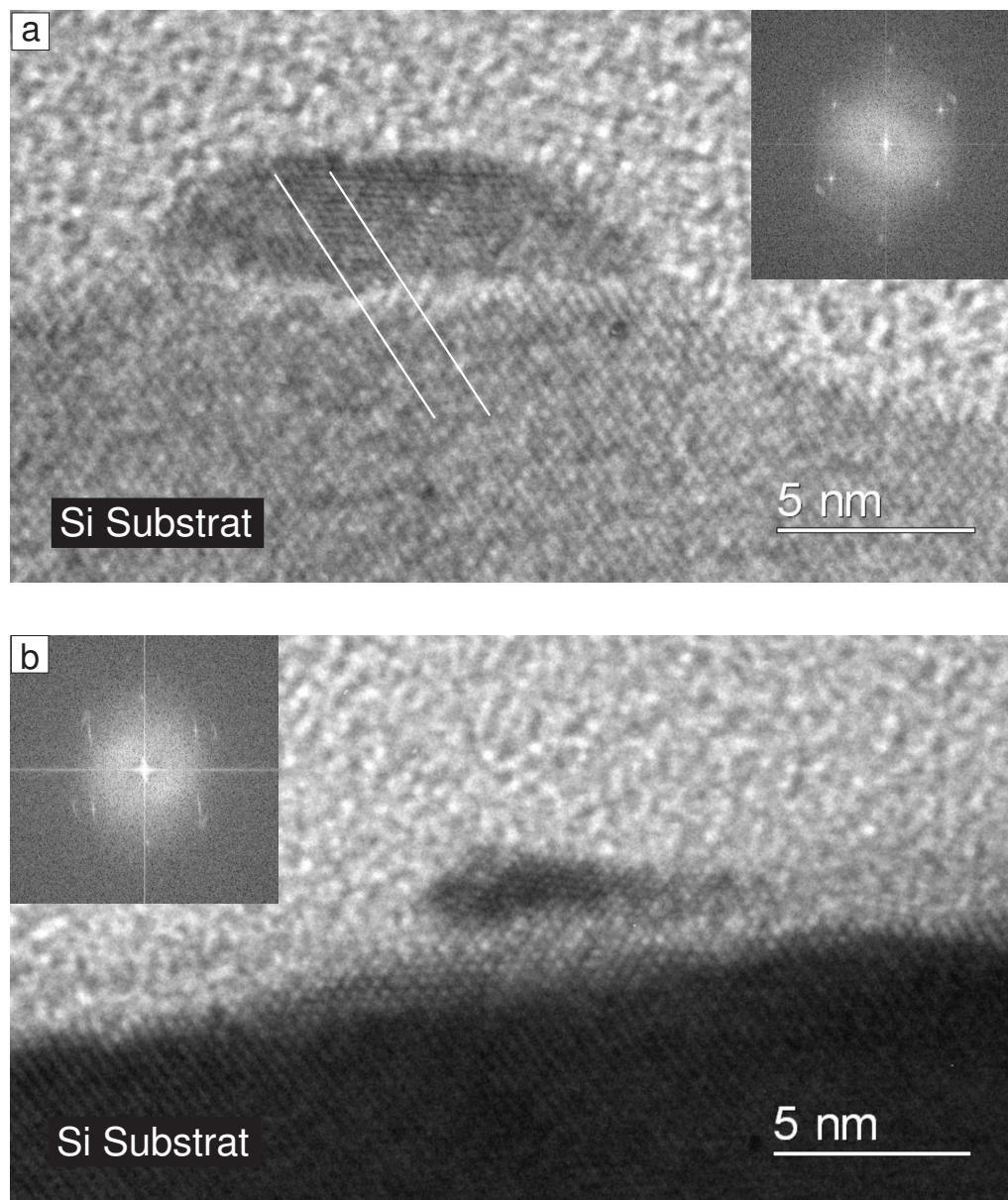


Abb. 5.1: HRTEM-Aufnahmen der Oberfläche eines Si(001)-Substrats, das für 60 s einem C_{60} -Fluss von $4,8 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ausgesetzt wurde. Die Proben temperatur betrug dabei 950°C . Gezeigt ist der Schnitt durch die (110)Si-Ebene. Die FFTs stellen für die beiden Teilbilder das jeweils berechnete Beugungsbild entlang [110]Si dar. (a) Epitaktisch orientierte 3C-SiC Insel mit Orientierungsbeziehung $(001) [110] \text{ Si} \parallel (001) [110] \text{ 3C-SiC}$ (b) 3C-SiC-Insel mit geringer Fehlorientierung. Das 3C-SiC-Gitter ist bezüglich des Si-Gitters um wenige Grad verdreht, wobei die Rotationsachse parallel zur [110]Si-Richtung verläuft.

die Versetzungslinien entlang der $[110]$ - und $[\bar{1}\bar{1}0]$ -Richtungen liegen [49, 126, 127]. Man beobachtet in periodischen Abständen ein Durchlaufen der $\{111\}$ -Netzebenen über die Grenzfläche hinweg, da vier $\{111\}$ -Netzebenenabstände von Si in etwa fünf $\{111\}$ -Netzebenenabständen von 3C-SiC entsprechen [126, 128].

Die exakte atomare Struktur der SiC/Si-Grenzfläche ist bis heute noch nicht vollständig geklärt und ist nicht Gegenstand der vorliegenden Arbeit. Problematisch erwies sich bereits die Abbildung der SiC/Si-Grenzfläche in den durchgeführten XTEM-Untersuchungen. Aufgrund mechanischer Spannungen, zurückzuführen auf die beschriebene Gitterfehlانpassung und Unterschiede im thermischen Ausdehnungsverhalten beider Materialien, wird sie während der Probenpräparation zur TEM verstärkt geschädigt. Als Folge davon zeigt sich der Übergang zwischen Si-Substrat und 3C-SiC-Insel häufig als teilweise oder ganz amorphisiert. Verlängert man jedoch in Abb. 5.1(a) die $\{111\}$ -Netzebenen des Si-Substrats über diesen gestörten Bereich hinweg, so kann auch hier die sog. 5-4-Passung zwischen 3C-SiC und Si beobachtet werden.

Wichtig für das weitere 3C-SiC-Wachstum ist die Tatsache, dass bereits in dieser frühen Phase der Schichtabscheidung eine Vielzahl von Defekten auftritt, die ihren Ursprung in der Gitterfehlانpassung oder in der Aufrauung des Substrats durch Si-Diffusion haben. In Abb. 5.1(b) ist beispielhaft eine 3C-SiC-Insel mit leichter Fehlorientierung dargestellt. Die Fast Fourier Transformation entspricht dem berechneten Beugungsbild für diese Probenstelle entlang $[110]\text{Si}$. Die äußeren 3C-SiC-Reflexe sind gegenüber den inneren Si-Reflexen um wenige Grad aus der epitaktischen Orientierung herausgedreht. Die Rotationsachse verläuft dabei parallel zur $[110]\text{Si}$ -Richtung. Wie die Untersuchungen im nachfolgenden Abschnitt zeigen werden, gehören auch Stapelfehler und Zwillingbildung auf den dicht-gepackten $\{111\}$ -Ebenen zu den typischen Defekten im 3C-SiC-Wachstum, die bereits im Anfangsstadium der Schichtabscheidung auftreten.

5.2 Hohlraumfreies 3C-SiC Schichtwachstum

Um hohlraumfreies heteroepitaktisches 3C-SiC-Wachstum auf Si(001) zu erreichen, erfolgte die Schichtabscheidung durch simultane Deposition von C_{60} und Si. Die Aufdampfraten beider Materialien wurden hierfür so gewählt, dass ein Si:C Verhältnis von 1:1 gegeben war. Damit sollte gewährleistet werden, dass lediglich das aus der Gasphase angebotene Si zur SiC-Synthese verwendet wird und eine Ausdiffusion von Si aus dem Substrat nicht stattfindet.

Gemäß den Ausführungen in Abschnitt 3.5 zum Ablauf des Depositionsprozesses ging der gleichzeitigen Deposition von C_{60} und Si ein sog. Karbonisierungsschritt voraus. Dabei wurde kurzzeitig nur C_{60} auf das heiße Si-Substrat aufgedampft, um eine wenige Nanometer dicke 3C-SiC-Schicht, eine sog. Karbonisierungsschicht, abzuscheiden. Das Ende der Karbonisierungsphase wurde durch das vollständige Verschwinden des Si-Signals aus dem RHEED-Beugungsbild bestimmt. Damit wurde verhindert, dass bereits in dieser Phase Gruben im Substrat gebildet werden. Wie aus der Literatur zur 3C-SiC-Heteroepitaxie mittels MBE und CVD bekannt ist, verbessert der zusätzliche Karbonisierungsschritt die kristalline Qualität der gewachsenen Schichten, da das epitaktische Anwachsen verbessert wird und mechanische Spannungen an der SiC/Si-Grenzfläche durch den Einbau von Versetzungen relaxiert werden. Im Idealfall sollte die Karbonisierungsschicht auch als Diffusionsbarriere für Si im weiteren Wachstumsschritt dienen. In der Praxis ist diese Eigenschaft auch bei vollständig geschlossener Karbonisierungsschicht aufgrund der Si-Diffusion entlang von Korngrenzen nicht gegeben.

Im nachfolgenden wird eine 80 nm dicke 3C-SiC-Schicht betrachtet, die bei einer Substrattemperatur von 950°C und einem C_{60} -Fluss von $5,1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ gewachsen wurde. Im Anschluss an den Karbonisierungsschritt wurden C_{60} und Si im Verhältnis Si:C=1:1 für 210 min simultan aufgedampft.

Mit Hilfe der RHEED-Analytik wurde das Schichtwachstum während des gesamten Prozesses in-situ beobachtet. Abb. 5.2 zeigt die charakteristischen RHEED-Beugungsbilder entlang der $[110]\text{Si}$ -Richtung in den wichtigen Phasen des Depositionsprozesses.

Vor dem Einbau in die UHV-Kammer wurde die natürliche SiO_2 -Schicht des Si(001)-Substrats durch Ätzen mit Flusssäure entfernt. Bei Raumtemperatur ist die wasserstoffterminierte $\text{H-Si}(001)(1 \times 1)$ -Oberfläche zu beobachten (s. Abb. 5.2(a)). Kikuchi-Linien verdeutlichen die hohe kristalline Qualität des Substrats. Nach dem Aufheizen auf 950°C zeigt das Beugungsbild in Abb. 5.2(b) neben den Si-Streaks bereits 3C-SiC-Beugungsreflexe, die auf das Vorhandensein von epitaktisch orientierten 3C-SiC-Inseln zurückzuführen sind. Es ist zu beachten, dass hier noch keine Deposition von C_{60} -Fullerenen aus der Effusionszelle stattgefunden hat. Verantwortlich für das frühzeitige 3C-SiC-Wachstum ist die unvermeidbare Restbedeckung des Probenhalters mit C_{60} aus den vorangegangenen Depositionsprozessen. Während des Aufheizvorganges desorbieren die Fullerenmoleküle und man beobachtet ab etwa 810°C , d.h. etwas oberhalb der experimentell ermittelten C_{60} -Fragmentationstemperatur auf Si(001), das Auftreten von 3C-SiC-Beugungsreflexen. Die Problematik der frühzei-

tigen SiC-Synthese ist nicht auf das hier verwendete Verfahren beschränkt, sondern tritt auch bei anderen Methoden zur 3C-SiC-Heteroepitaxie auf und wird durch Restkonzentrationen an Kohlenstoff bzw. kohlenstoffhaltigen Verbindungen verursacht [129].

Die Lage der 3C-SiC-Beugungsreflexe in Abb. 5.2(b) lässt sich vollständig durch epitaktisches Wachstum mit der Orientierungsbeziehung

$$(001) [110] \text{ Si} \parallel (001) [110] \text{ 3C-SiC}$$

und dem Vorhandensein von 3C-SiC-Zwillingen erster Ordnung erklären. Abb. 5.13 zeigt eine entsprechende Simulation der Transmissions-RHEED-Beugungsbilder. Es wird darauf hingewiesen, dass die berechneten Beugungsbilder gegenüber den Messungen um 180° verdreht sind, da die RHEED-Untersuchungen bei hängend montierter Probe (s. Abb. 3.5) durchgeführt wurden. Im 3C-SiC mit Zinkblende-Struktur entstehen Zwillinge durch Spiegelung der Stapelfolge von Si-C-Doppellagen an $\{111\}$ -Zwillings Ebenen. Erfolgt die Zwillingsbildung auf der Grundorientierung, so spricht man von Zwillingen erster Ordnung. Findet auf diesen eine weitere Verzwillingung statt, so erhält man sog. Zwillinge zweiter Ordnung. Alternativ können die Zwillingsorientierungen auch durch eine 180° -Rotation der kubischen Einheitszelle um die $\langle 111 \rangle$ -Richtungen konstruiert werden, wie es in Abb. 5.13 dargestellt ist. Zur Simulation der zusätzlich auftretenden Zwillingsreflexe im $[110]$ -Azimut genügt hier die Rotation um die $[\bar{1}11]$ - und $[1\bar{1}1]$ -Richtung. Die verbleibenden beiden Zwillingsorientierungen, die aus der 180° -Rotation der 3C-SiC-Einheitszelle um die $[111]$ - und $[11\bar{1}]$ -Richtung hervorgehen, treten im Beugungsbild entlang $[110]$ nicht durch zusätzliche Beugungsreflexe in Erscheinung.

Das Si-Substrat ist in Abb. 5.2(b) durch Streaks erkennbar, was auf eine relativ glatte Si(001)-Oberfläche hinweist. Neben den Hauptstreaks können auch noch sehr schwache Rekonstruktionsstreaks beobachtet werden, die sich in der Aufheizphase gebildet haben. Da sich im $[110]$ - und $[1\bar{1}0]$ -Azimut identische Beugungsbilder ergaben, kann auf eine Si(001)(2×1)-Rekonstruktion in zwei senkrecht zueinander stehenden Domänen geschlossen werden.

Während des Karbonisierungsschrittes wurde das Substrat solange mit C_{60} bedampft, bis die Silizium-Streaks aus dem Beugungsbild vollständig verschwunden waren. Das RHEED-Bild am Ende der Karbonisierung ist in Abb. 5.2(c) dargestellt. Die Streaks des 3C-SiC sind gegenüber Abb. 5.2(b) noch etwas deutlicher ausgeprägt. Mit Hilfe der Simulationen in Abb. 5.13 wird klar, dass die geneigten Streaks auf $\{111\}$ -Facetten der Grundorientierung zurückzuführen sind und einen Winkel von $54,74^\circ$ mit der Senkrechten einschließen. Die ebenfalls sichtbaren senk-

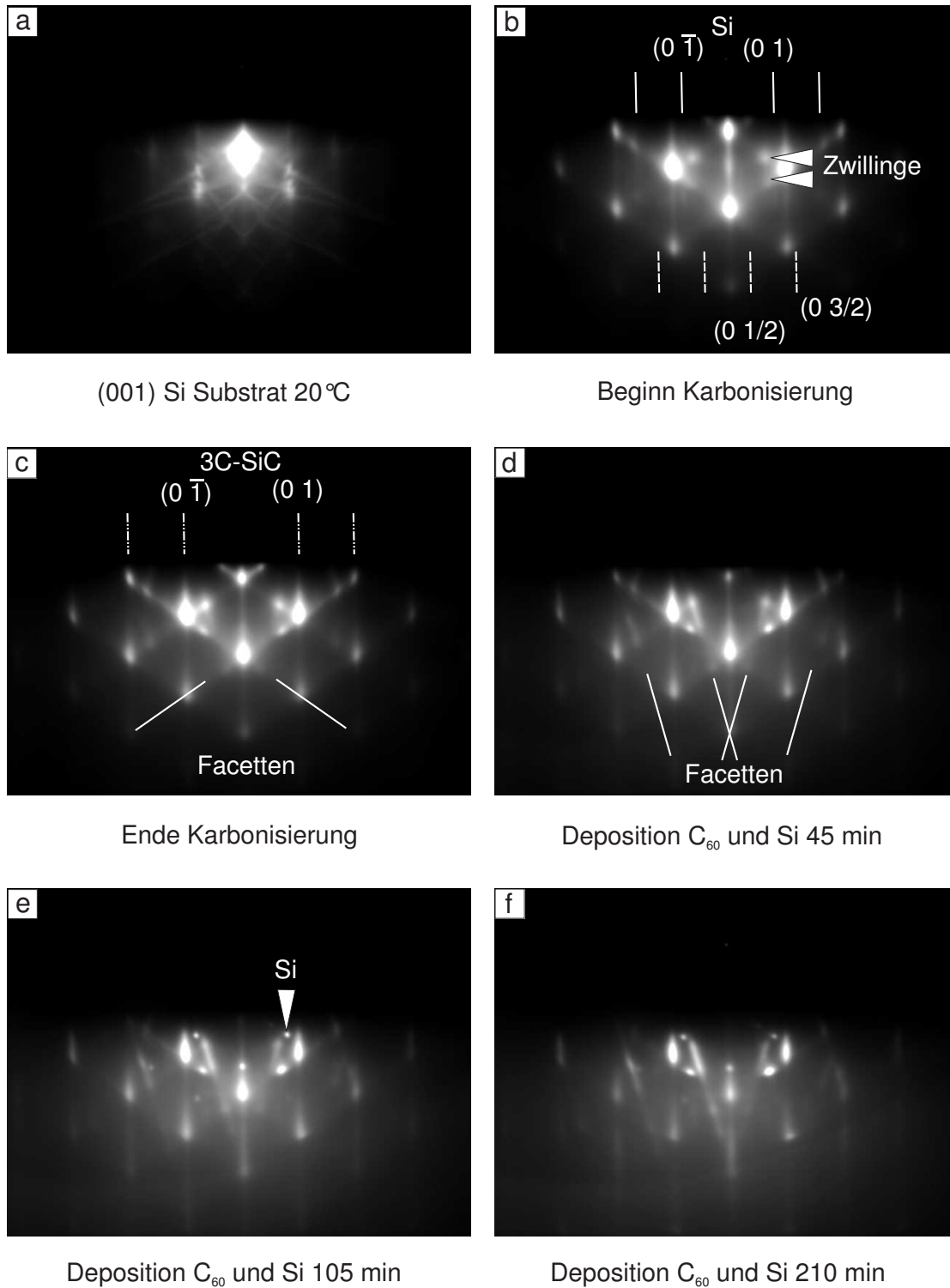


Abb. 5.2: RHEED-Messungen im $[110]$ -Azimut an einer 80 nm dicken 3C-SiC-Schicht auf Si(001). Die Probenherstellung erfolgte bei einer Substrattemperatur von 950°C und einem C_{60} -Fluss von $5,1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. Im Anschluss an den Karbonisierungsschritt wurden C_{60} und Si im Verhältnis $\text{Si}:\text{C}=1:1$ für 210 min gleichzeitig angeboten. Abweichungen vom idealen Aufdampfverhältnis führten ab 105 min zu zusätzlichen Si-Reflexen.

recht verlaufenden Streaks weisen auf 3C-SiC(001)-Oberflächen hin. Fasst man die Ergebnisse aus den Streakverläufen zusammen, so kann mit hoher Wahrscheinlichkeit darauf geschlossen werden, dass die 3C-SiC-Kristallite in diesem Wachstumsstadium die Form eines Pyramidenstumpfes mit {111}-Seitenflächen und einer (001)-Deckfläche besitzen.

In der nachfolgenden simultanen Deposition von C₆₀ und Si (s. Abb. 5.2(d) bis (f)) ist festzustellen, dass die Streaks mit 54,74°-Neigung gegen die Senkrechte durch wesentlich steiler verlaufende Streaks abgelöst werden. Anhand der Simulationen in Abb. 5.13 können diese Streaks mit einer Neigung von 15,79° gegen die Senkrechte ebenfalls auf {111}-Facetten zurückgeführt werden. Jedoch sind die betreffenden {111}-Ebenen in diesem Fall den 3C-SiC-Zwillingen erster Ordnung zuzuordnen. Diese Facettenbildung der Zwillingsorientierungen ist typisch für den fortschreitenden Wachstumsprozess und kann bis zum Ende der Schichtabscheidung mit zunehmender Dominanz beobachtet werden.

Bedingt durch die schwierige Kontrolle des Depositionsratenverhältnisses erfolgte die Schichtabscheidung ab ca. 105 min unter siliziumreichen Bedingungen. In Abb. 5.2(e) ist dies durch das zusätzliche Auftreten von Si-Beugungsreflexen zu erkennen. Verursacht werden sie durch Si-Inseln, die epitaktisch auf der 3C-SiC-Oberfläche aufgewachsen sind. Es herrscht dabei die gleiche Orientierungsbeziehung wie zwischen 3C-SiC-Schicht und Si-Substrat. Wie aus den RHEED-Aufnahmen hervorgeht, wurde das epitaktische 3C-SiC-Wachstum in den verbleibenden 105 min der Schichtabscheidung durch das geringe Überangebot an Si nicht negativ beeinflusst. Es ist anzunehmen, dass die den Reflexen zuzuordnenden Ausscheidungen während der SiC-Synthese als lokale Si-Quelle dienten. Experimente im Rahmen dieser Arbeit haben allerdings verdeutlicht, dass ein zu großes Überangebot von Si aus der Gasphase unbedingt zu vermeiden ist, da sonst Störungen im 3C-SiC-Wachstum auftreten, die zum Verlust der Epitaxie führen können.

Die bis zum Ende der Schichtabscheidung (s. Abb. 5.2(f)) charakteristischen senkrechten 3C-SiC-Streaks weisen darauf hin, dass sich die wachsende Schicht aus epitaktisch orientierten Körnern zusammensetzt, von denen die überwiegende Mehrheit eine relativ glatte (001)-Oberfläche besitzt. Rauigkeiten, die aus dem dreidimensionalen Wachstumsmodus resultieren, führen dazu, dass die Streaks stets von Transmissions-Beugungsreflexen des 3C-SiC überlagert bleiben.

Die Stöchiometrie der gewachsenen 3C-SiC-Schicht wurde mittels RBS überprüft. Abb. 5.3 zeigt das mit 1,8 MeV ⁴He²⁺ gemessene Rückstreupektrum. Bei einer Energie von etwa 1040 keV befindet sich die Si-Kante. Der Anstieg im Rückstreusignal

bei etwa 980 keV wird durch den Übergang vom verringerten Si-Signal der SiC-Schicht zu dem des Si-Substrats hervorgerufen. Die Kohlenstoffkante liegt bei etwa 460 keV. Die Breite des C-Signals wird durch die Dicke der SiC-Schicht bestimmt. Die mit Hilfe von RUMP berechnete Simulation des Spektrums ist gestrichelt eingezeichnet. Ihre gute Übereinstimmung mit der Messung bei einem angenommenen Si:C-Verhältnis von eins lässt den Schluss zu, dass eine stöchiometrische SiC-Schicht mit einer Dicke von 80 nm gewachsen wurde.

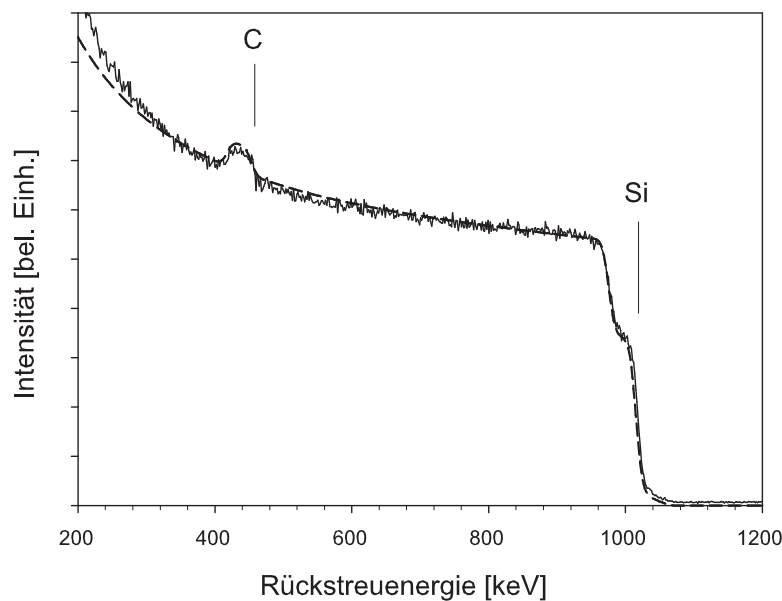


Abb. 5.3: 1,8 MeV $^4\text{He}^{2+}$ RBS-Spektrum an einer hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schicht auf Si(001). Die gestrichelte Linie zeigt die mit Hilfe von RUMP berechnete Simulation des Spektrums, wobei für die 3C-SiC-Schicht ein Si:C-Verhältnis von eins und eine Dicke von 80 nm angenommen wurde.

Gemäß den Ausführungen in Abschnitt 4.5 wurde die Rasterelektronenmikroskopie verwendet, um das Si-Substrat nach der 3C-SiC-Schichtabscheidung auf Hohlräume hin zu überprüfen. Abb. 5.4 zeigt repräsentativ die REM-Aufnahme eines ausgewählten Bereiches der Schichtoberfläche, wobei zur Abbildung eine Beschleunigungsspannung von 20 kV verwendet wurde. Das Nichtvorhandensein von dunkleren Bereichen, wie sie beispielhaft in Abb. 3.4 in Abschnitt 3.3 zu sehen sind, verdeutlicht, dass keine Hohlraumbildung unterhalb der 3C-SiC-Schicht stattgefunden hat. Umfangreiche REM-Untersuchungen an verschiedenen Probenstellen bestätigen dieses Ergebnis.

Allerdings weist die Probenoberfläche Verunreinigungen in Form von einzelnen Kristalliten auf, die in Vertiefungen des Si-Substrats aufzufinden sind. Die chemische Zusammensetzung dieser Kristallite wurde in XTEM mit Hilfe der energiedispersi-

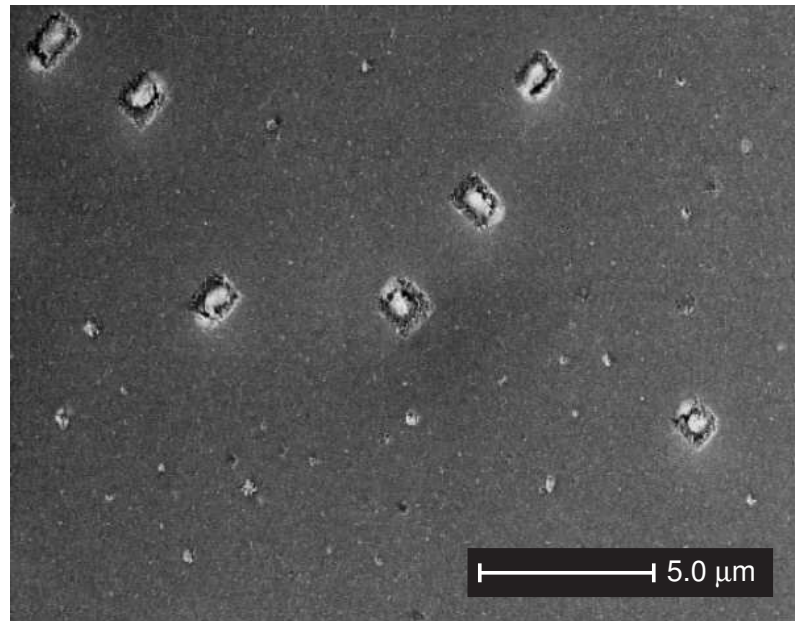


Abb. 5.4: REM-Aufnahme der Oberfläche einer hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schicht auf Si(001). Zur Detektion von Hohlräumen wurde eine Beschleunigungsspannung von 20 kV verwendet.

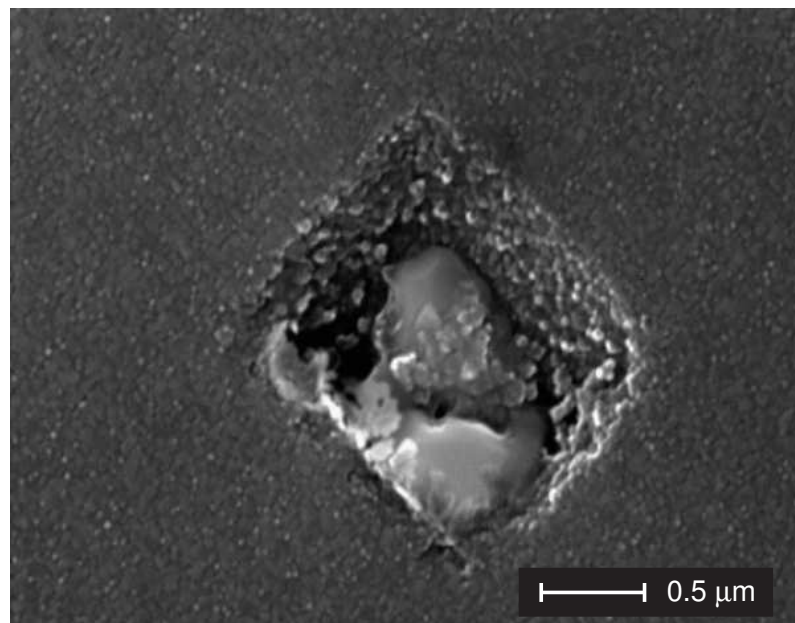


Abb. 5.5: REM-Aufnahme der Oberfläche einer hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schicht auf Si(001). Gezeigt ist eine Silizidverunreinigung, die sich in einer Vertiefung der Si-Oberfläche befindet.

ven Röntgenanalyse (EDX, Energy Dispersive X-ray Analysis) untersucht. Anhand des Spektrums in Abb. 5.6 kann darauf geschlossen werden, dass es sich hierbei um eine Kontamination in Form von Eisen- und Nickelsiliziden handelt. Die Detektion von Ar, Cu und Zn ist auf die Präparation der betreffenden Probe zur TEM zurückzuführen. Ar diente als Sputtergas, Cu und Zn stammen aus dem verwendeten Messingtöpfchen. Als Quelle der Kontamination mit Eisen- und Nickelsiliziden konnten die Klammern identifiziert werden, die zur Befestigung des Substrats am Probenheizer dienen. Der Hersteller des Probenhalters zur SiC-Schichtabscheidung hatte als Material für diese Klammern Stahl statt des geforderten Molybdäns für Hochtemperaturanwendungen verwendet. Fe und Ni, das während des Aufheizvorganges zur Schichtabscheidung von den Klammern abdampfte und auf die reaktive Si-Oberfläche traf, führte lokal zur Silizidbildung.

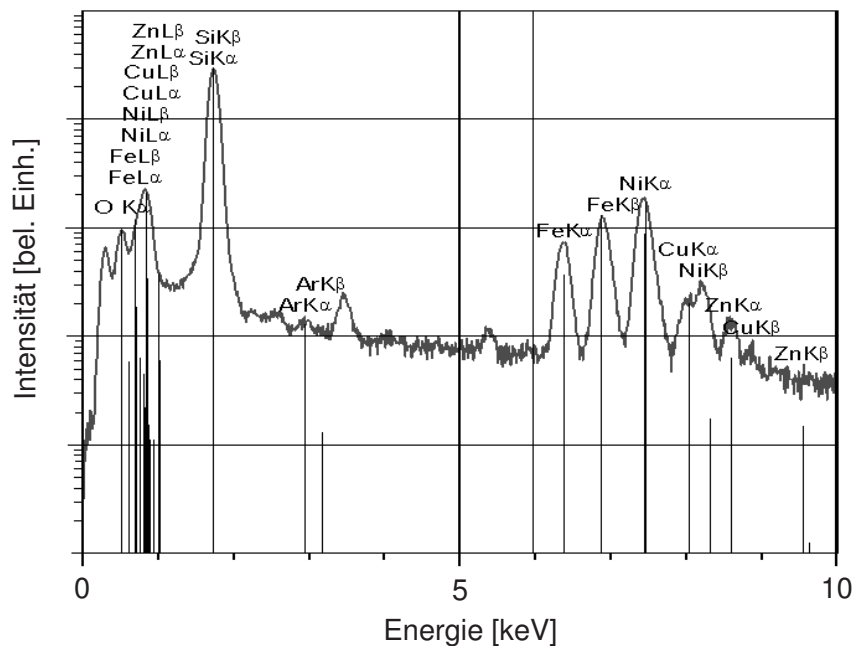


Abb. 5.6: EDX-Spektrum an einer Verunreinigung der Probe. Die Messung wurde im Rahmen von XTEM-Untersuchungen durchgeführt. Die Detektion von Ar, Cu und Zn ist auf die Präparation der betreffenden Probe zur TEM zurückzuführen. Ar diente als Sputtergas, Cu und Zn stammen aus dem verwendeten Messingtöpfchen.

Abb. 5.5 zeigt eine der Verunreinigungen in der Vergrößerung. Form und kristallographische Ausrichtung der Vertiefung im Si(001) werden dadurch bestimmt, dass Silizium bevorzugt $\{111\}$ -Oberflächen ausbildet, um die Oberflächenenergie zu minimieren. An den seitlichen Si-Begrenzungen hat während des Depositionsprozesses SiC-Wachstum stattgefunden. Die Kontamination selbst überragt die umge-

bende Probenoberfläche nicht. Dieser Umstand erklärt, warum in den RHEED-Untersuchungen keine zusätzlichen Beugungsreflexe auftraten, die auf unerwünschte Silizidbildung zurückzuführen sind.

In den durchgeführten RBS-Messungen konnten die Verunreinigungen der Probenoberfläche nicht beobachtet werden, da die Konzentration an Fe und Ni noch unterhalb der Nachweisgrenze lag.

Durch den Austausch der Halteklammern gegen Bauteile aus Molybdän wurde das Problem der Probenkontamination vollständig beseitigt. Weitere Experimente haben gezeigt, dass die zum 3C-SiC-Wachstum gewonnenen Ergebnisse durch die lokal begrenzten Silizidverunreinigungen in keiner Weise beeinflusst wurden.

Struktur und Textur der betreffenden hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schicht wurde mit Hilfe der Röntgendiffraktometrie untersucht. In Abb. 5.7 ist die Polfigurmessung für einen Netzebenenabstand von $d = 0,251$ nm dargestellt, was sowohl den $\{111\}$ -Reflexen des 3C-SiC als auch den $\{00n\}$ -nH/R-SiC-Reflexen nicht-kubischer SiC-Polytypen entspricht. Anhand der Lage der Poldichtemaxima ist es somit möglich, zwischen α -SiC und β -SiC zu unterscheiden und die jeweilige Orientierungsbeziehung anzugeben.

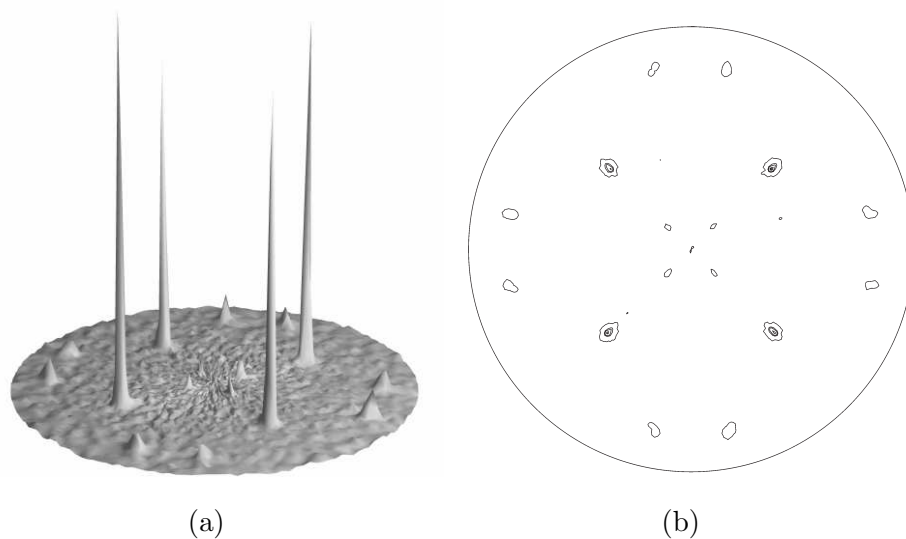


Abb. 5.7: Polfigurmessung an einer hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schicht auf Si(001) für einen Netzebenenabstand von $d = 0,251$ nm. Die vier dominanten Poldichtemaxima bei $\chi=55^\circ$ sind den $\{111\}$ -Polen des (001)-orientierten 3C-SiC zuzuordnen. Die intensitätsschwachen Poldichtemaxima bei $\chi=16^\circ$ und $\chi=79^\circ$ werden durch einen geringen Anteil an 3C-SiC-Zwillingen erster Ordnung verursacht. (a) 3D-Darstellung und (b) 2D-Darstellung.

Die Messung zeigt vier Poldichtemaxima mit hoher Intensität beim polaren Winkel $\chi=55^\circ$. Vier bzw. acht weitere Poldichtemaxima mit geringer Intensität befinden sich bei $\chi=16^\circ$ bzw. $\chi=79^\circ$. Anhand der Simulationen in Abb. 5.14 ist zu erkennen, dass die Hauptorientierung durch (001)-orientiertes 3C-SiC erklärt werden kann, wobei die vier $\{111\}$ -Pole bei einem theoretischen Winkel von $\chi=54,74^\circ$ liegen. Die verbleibenden intensitätsschwachen Poldichtemaxima sind auf einen geringen Anteil von Zwillingen erster Ordnung zurückzuführen, deren Existenz bereits in den RHEED-Untersuchungen nachgewiesen werden konnte. In der Theorie werden Zwillingmaxima erster Ordnung bei $\chi=15,79^\circ$ und $\chi=78,90^\circ$ erwartet. Es sei darauf hingewiesen, dass in Abb. 5.14 beispielhaft nur eine der vier möglichen Orientierungen für Zwillinge erster Ordnung simuliert wurde. Eine vollständige Simulation der $\{111\}$ -Polfigur für Zwillinge erster Ordnung, wie sie in Abb. 5.16(d) in Abschnitt 5.3 zu sehen ist, erfordert die Rotation der 3C-SiC-Einheitszelle um alle vier $\langle 111 \rangle$ -Richtungen um 180° .

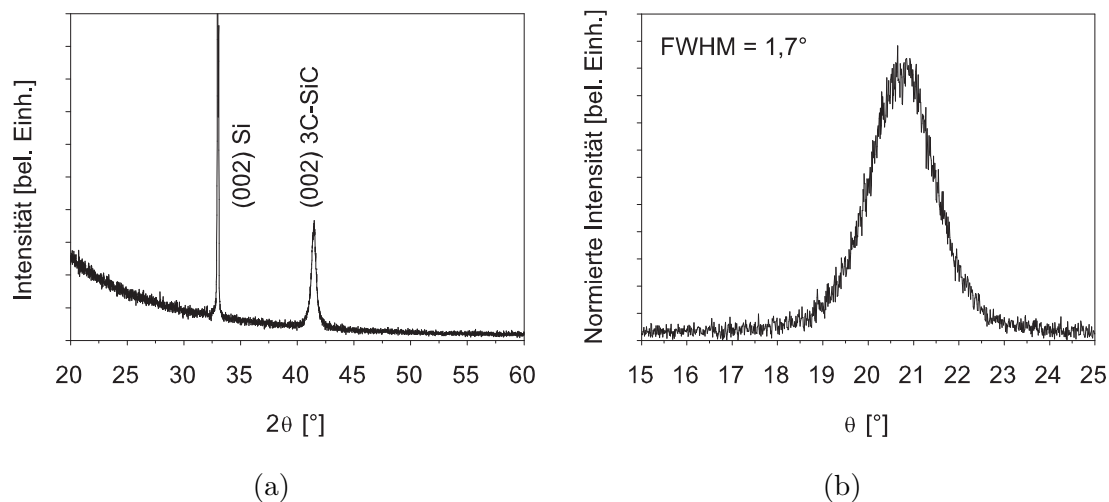


Abb. 5.8: (a) θ - 2θ -Röntgen-Beugungsdiagramm an einer hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schicht auf Si(001) (b) Rocking-Kurve des (002)-Reflexes von 3C-SiC

Das θ - 2θ -Beugungsdiagramm in Abb. 5.8(a) zeigt in Übereinstimmung mit den Ergebnissen aus der Polfigurmessung lediglich den (002)-Reflex des 3C-SiC. Die Rocking-Kurve in Abb. 5.8(b) an diesem Reflex liefert ein Maß für die mittlere Verkipfung der 3C-SiC Kristallite um die Probennormale. Hierbei werden allerdings nur Kristallite aus der Hauptorientierung und keine Zwillingorientierungen berücksichtigt, da letztere nicht zum betreffenden Reflex beitragen. Aus der ermittelten Halbwertsbreite von $1,7^\circ$ kann geschlossen werden, dass bei der vorliegenden gerin-

gen Schichtdicke von 80 nm die mittlere Verkipfung der 3C-SiC-Kristallite noch relativ groß ist. Zur Klärung der Frage, ob mit zunehmender Schichtdicke eine Verbesserung der Epitaxie und damit eine Verringerung der Halbwertsbreite in der Rocking-Kurve erreicht werden kann, sei auf Abschnitt 5.3 verwiesen.

Um Aufschluss über die Feinstruktur der hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schicht zu erhalten, wurde diese mittels Transmissionselektronenmikroskopie im Querschnitt untersucht. Die Hellfeldaufnahme in Abb. 5.9 lässt erkennen, dass sich die SiC-Schicht aus einzelnen Körnern zusammensetzt, welche sich vom Substrat bis zur Probenoberfläche erstrecken. Die Breite der Körner ist zum Teil sehr unterschiedlich, überschreitet aber in der Regel 100 nm nicht. Die Oberfläche der einzelnen Kristallite ist in der Mehrzahl relativ glatt, was im Einklang mit der Beobachtung von senkrechten 3C-SiC-Streaks in den RHEED-Beugungsbildern steht. Im Silizium sind, wie anhand der REM-Untersuchungen bereits großflächig gezeigt wurde, keine Hohlräume vorhanden. Die Si/SiC-Grenzfläche ist durch die Si-Diffusion während der Karbonisierungsphase aufgeraut. Zwischen benachbarten SiC-Körnern können häufig Erhöhungen im Si beobachtet werden.

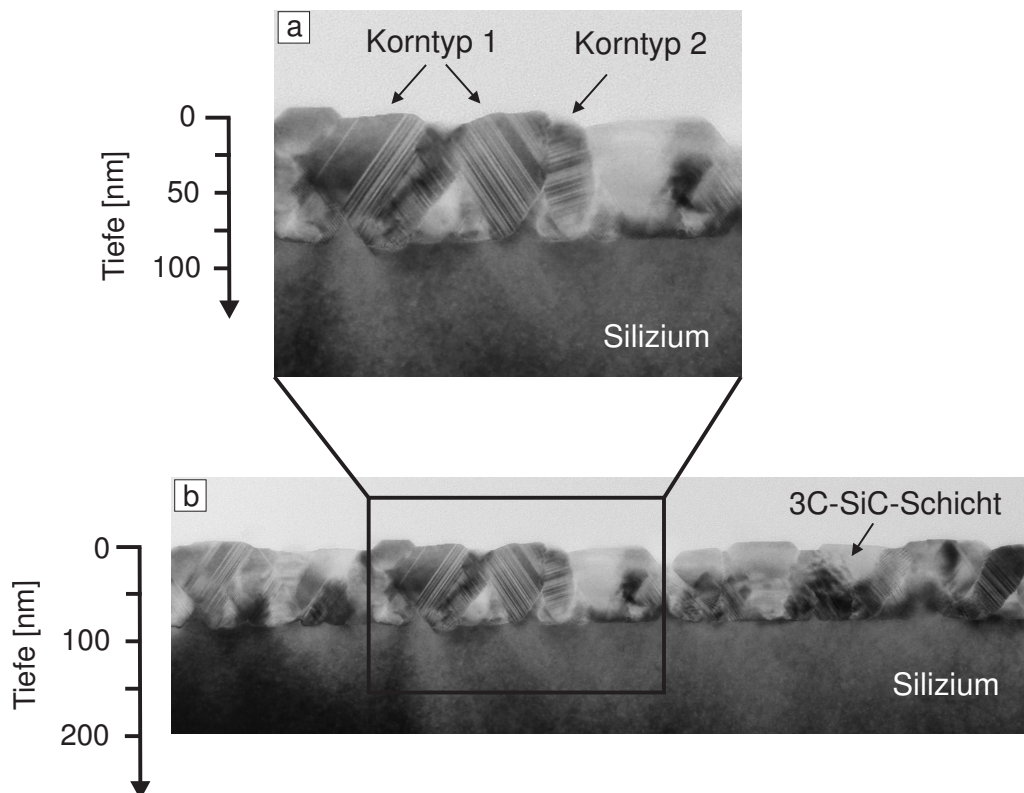


Abb. 5.9: TEM-Hellfeldaufnahme an einer hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schicht auf Si(001). Gezeigt ist der Schnitt durch die (110)Si-Ebene.

Wie in Abb. 5.9(a) zu erkennen ist, weisen einige der SiC-Körner streifenförmige Kontraste auf. Ausgehend vom spitzen Winkel, den diese Streifen mit der Si(001)-Oberfläche einschließen, können prinzipiell zwei verschiedene Typen von Körnern identifiziert werden. Innerhalb eines Korntyps ist der Neigungswinkel der Streifen konsistent.

Im Rahmen von TEM-Untersuchungen an homoepitaktisch gewachsenen 3C-SiC-Schichten wurden die betreffenden streifenförmigen Kontraste ebenfalls beobachtet. Abb. 6.13(a) in Abschnitt 6.2 zeigt beispielhaft eine Hellfeldaufnahme, die dies anhand einer Streifenrichtung mit charakteristischem Neigungswinkel verdeutlicht. Ein Vergleich mit der korrespondierenden Dunkelfeldaufnahme in Abb. 6.13(c), die mit einem 3C-SiC-Zwillingsreflex erster Ordnung angefertigt wurde, lässt erkennen, dass die betreffenden Streifen parallel zu $\{111\}$ -Ebenen des 3C-SiC orientiert sind. Es kann gefolgert werden, dass in den dunkleren streifenförmigen Bereichen der Hellfeldaufnahme, im Vergleich zu den hellen Gebieten, Abweichungen von der Stapelfolge der $\{111\}$ -Ebenen vorliegen. Störungen der Stapelfolge können sowohl in Form von Stapelfehlern als auch durch sog. Zwillingslamellen auftreten. Letztere sind in der Dunkelfeldaufnahme in Abb. 6.13(c) als stark angeregte Bereiche erkennbar. Die Stapelfolge der $\{111\}$ -Ebenen ist in diesen Lamellen bezüglich der Ausgangsorientierung gespiegelt, wobei die Spiegelebene durch die Grenzfläche zwischen Ausgangs- und Zwillingsorientierung definiert wird. Zum Zwecke der Vollständigkeit sei erwähnt, dass Abweichungen von der Stapelfolge prinzipiell auch durch das Auftreten von nicht-kubischen SiC-Polytypen hervorgerufen werden können. RHEED- und XRD-Untersuchungen haben aber gezeigt, dass dies bei der betrachteten hohlraumfrei gewachsenen Schicht in Abb. 5.9 nicht der Fall ist.

Es ist zu beachten, dass sich die vorangegangenen Betrachtungen lediglich auf Streifen mit einem der beiden charakteristischen Neigungswinkel beziehen. Anhand von weiteren, hier nicht dargestellten TEM-Untersuchungen konnte jedoch auch der zweite Streifentyp mit der Lage von $\{111\}$ -Ebenen des 3C-SiC korreliert werden. Zu diesem Zweck wurden Dunkelfeldaufnahmen mit 3C-SiC-Zwillingsreflexen zweiter Ordnung angefertigt.

Gemäß den vorangegangenen Ausführungen verlaufen die Streifen der Korntypen in Abb. 5.9(a) parallel zu den $\{111\}$ -Ebenen, die senkrecht zur Stapelrichtung liegen. Damit ist es möglich, Aussagen über Orientierung und Wachstum dieser Kristallite zu treffen. Eine schematische Darstellung der beiden Typen von 3C-SiC-Körnern findet sich in Abb. 5.10.

Homogen gewachsene Kristallite weisen keine streifenförmigen Kontraste in den Hellfeldaufnahmen auf. In diesem Fall kann eine Zuordnung zum Typ 1 bzw. Typ 2 nur mit Hilfe von HRTEM-Aufnahmen erfolgen.

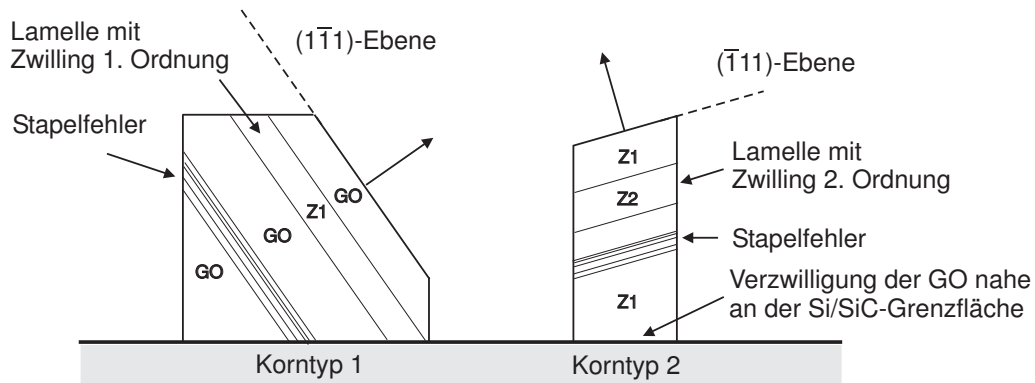


Abb. 5.10: Schematische Darstellung der beiden Korntypen im heteroepitaktischen 3C-SiC-Wachstum auf Si(001). Gezeigt ist ein Schnitt durch die (110)-Ebene. Im Korntyp 1 liegt das 3C-SiC in der epitaktischen Grundorientierung (GO) mit möglichen Zwillingslamellen (Z1) erster Ordnung vor. Korntyp 2 wächst in Zwillingsorientierung erster Ordnung mit möglichen Zwillingslamellen (Z2) zweiter Ordnung. Die eingezeichneten Pfeile entsprechen der Stapelrichtung der $\{111\}$ -Ebenen.

Im Korntyp 1 liegt das 3C-SiC in der epitaktischen Hauptorientierung vor, wobei streifenförmige Kontraste durch eine hohe Stapelfehlerdichte bzw. Zwillingslamellen auf den $\{111\}$ -Ebenen verursacht werden. Der theoretische spitze Winkel zwischen den Streifen und der Si(001)-Oberfläche beträgt $54,74^\circ$.

Tritt während des Kornwachstums eine Spiegelung der Stapelfolge auf, so wird durch die Spiegelebene der Beginn einer Zwillingslamelle erster Ordnung definiert. Findet im weiteren Wachstum eine erneute Spiegelung der Stapelfolge statt, so wird durch diese zweite Spiegelebene das Ende der Zwillingslamelle bestimmt und das Korn wächst in der ursprünglichen Grundorientierung weiter. Auf diese Weise kann ein Korn vom Typ 1 Zwillinge erster Ordnung in Form von einzelnen Zwillingslamellen enthalten, die in die Grundorientierung eingebettet sind.

Ausgehend von der zugrunde liegenden Stapelrichtung im Korntyp 1, liegt die Vermutung nahe, dass entsprechende Kristallite, insbesondere in der Anfangsphase des Schichtwachstums, $\{111\}$ -Facetten aufweisen, die eine Neigung von $54,74^\circ$ gegen die Oberfläche besitzen. Bei fortschreitendem Wachstum verschwinden diese Facetten jedoch zunehmend, wenn benachbarte Körner miteinander in Kontakt treten. Die RHEED-Untersuchungen stehen mit dieser Behauptung im Einklang. Streaks mit einer Neigung von $54,74^\circ$ gegen die Senkrechte können lediglich in der Anfangsphase des 3C-SiC-Wachstums beobachtet werden und verschwinden bereits bei geringer

Schichtdicke aus den Beugungsbildern.

Körner vom Typ 2 wachsen in einer Zwillingsorientierung erster Ordnung. Die streifenförmigen Kontraste schließen mit der Si(001)-Oberfläche einen theoretischen Winkel von $15,79^\circ$ ein. Da die Streifen gewöhnlich bis nahe an die Si/SiC-Grenzfläche reichen, kann gefolgert werden, dass die für das weitere Wachstum verantwortliche Verzwillingung bereits in einem sehr frühen Stadium der Schichtabscheidung stattfindet. Das Korn wächst zunächst epitaktisch auf der Si(001)-Oberfläche auf. Durch die Spiegelung der Stapelfolge von $\{111\}$ -Ebenen, die hier noch einen spitzen Winkel von $54,74^\circ$ mit der Si(001)-Oberfläche einschließen, wird das 3C-SiC in eine Zwillingsorientierung erster Ordnung überführt. In dieser Orientierung existieren $\{111\}$ -Netzebenenscharen, die jeweils einen theoretischen Winkel von $15,79^\circ$, $54,74^\circ$ und $78,90^\circ$ zur Si(001)-Ebene aufweisen. Wie die Streifen im Korntyp 2 zeigen, erfolgt das weitere Wachstum ausschließlich durch das Aufstapeln von $\{111\}$ -Ebenen mit $15,79^\circ$ -Neigung, wobei Stapelfehler in hoher Dichte auftreten können. Analog zum Korntyp 1 kann auch Korntyp 2 Zwillingslamellen enthalten. Da bei Typ 2 jedoch die Verzwillingung auf einer Zwillingsorientierung erster Ordnung stattfindet, liegt das 3C-SiC in den betreffenden Lamellen als Zwilling zweiter Ordnung vor.

Aus der geschilderten Wachstumscharakteristik von Korntyp 2 kann geschlossen werden, dass entsprechende Kristallite während des Schichtwachstums $\{111\}$ -Facetten mit $15,79^\circ$ -Neigung gegen die Oberfläche ausbilden. Aufgrund des flachen Winkels, existieren diese Facetten auch dann noch weiter, wenn sich benachbarte Kristallite an den Seitenflächen berühren und das Kornwachstum nur noch in Richtung der Probennormalen stattfindet. Die durchgeführten RHEED-Untersuchungen bestätigen diese Facettenbildung durch das Auftreten entsprechend geneigter Streaks, die bis zum Ende der Schichtabscheidung beobachtet werden können. Darüber hinaus zeigen die Beugungsbilder bereits zu Beginn des Schichtwachstums Zwillingsreflexe, was auf die erwähnte Zwillingsbildung nahe der Si/SiC-Grenzfläche hinweist.

Abb. 5.11 zeigt die TEM-Feinbereichsbeugung entlang $[110]_{3C-SiC}$ an der hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schicht. Die Lage der Si- und 3C-SiC-Beugungsreflexe verdeutlicht das epitaktische Wachstum mit der Orientierungsbeziehung:

$$(001) [110] \text{ Si} \parallel (001) [110] \text{ 3C-SiC}$$

Es können schwache Beugungsreflexe beobachtet werden, die auf die Existenz von 3C-SiC-Zwillingen erster Ordnung zurückzuführen sind. Einer dieser Zwillingsreflexe ist beispielhaft markiert. Des Weiteren lässt die Beugungsaufnahme Streaks entlang

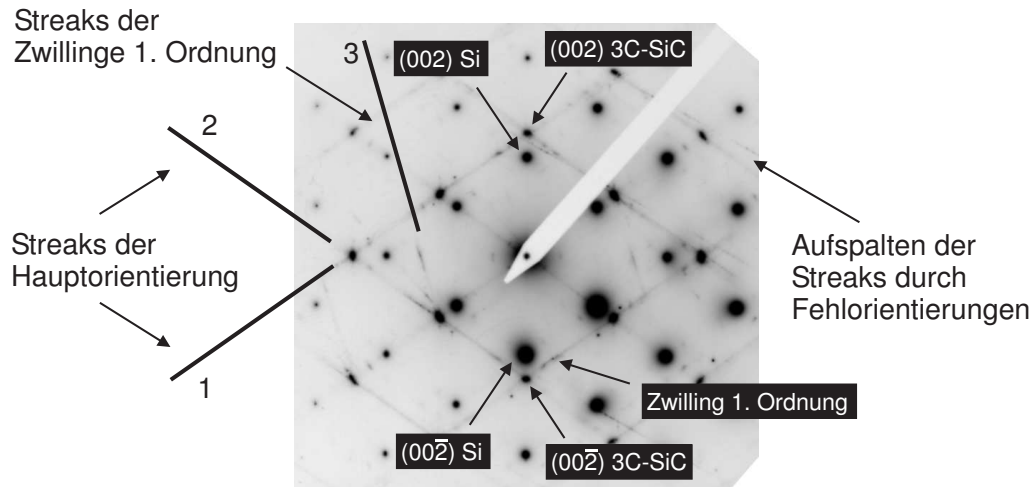


Abb. 5.11: TEM-Feinbereichsbeugung entlang $[110]_{3C-SiC}$ an einer hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schicht auf Si(001). Streaks sind auf eine hohe Dichte von Stapelfehlern auf $\{111\}$ -3C-SiC-Ebenen bzw. plättchenförmiges Wachstum in Form von Zwillingslamellen zurückzuführen. Streakrichtung 1 und 2 sind der epitaktischen Hauptorientierung von 3C-SiC im Korntyp 1 zuzuordnen. Streakrichtung 3 ist mit Korntyp 2 in Zwillingsorientierung erster Ordnung verknüpft.

charakteristischer Richtungen erkennen, was auf eine hohe Dichte von Stapelfehlern bzw. plättchenförmiges Wachstum hinweist [124].

Simulationen der TEM-Beugungsbilder für 3C-SiC entlang $[110]$ sind in Abb. 5.15 dargestellt. Zur Konstruktion der Zwillingsreflexe erster Ordnung wurde eine 180° -Rotation der 3C-SiC-Einheitszelle um die $[\bar{1}11]$ - und $[1\bar{1}1]$ -Richtung durchgeführt. Die verbleibenden beiden Zwillingsorientierungen, die aus der 180° -Rotation um die $[111]$ - und $[1\bar{1}\bar{1}]$ -Richtung hervorgehen, treten im Beugungsbild entlang $[110]$ nicht durch zusätzliche Beugungsreflexe in Erscheinung.

Die simulierten Beugungsbilder gestatten es, die charakteristischen Streakrichtungen in Abb. 5.11 mit den beiden Korntypen im 3C-SiC-Wachstum zu korrelieren. Die Streakrichtungen 1 und 2 können der epitaktischen Hauptorientierung des 3C-SiC (s. Abb. 5.15(a)) im Korntyp 1 zugeordnet werden und entstehen durch Stapelfehler auf $\{111\}$ -Ebenen bzw. plättchenförmiges Wachstum in Form von Zwillingslamellen erster Ordnung. Die intensitätsschwache Streakrichtung 3 ist mit Korntyp 2 in Zwillingsorientierung erster Ordnung (s. Abb. 5.15(b)) verknüpft. Mögliche Ursachen für diese Streaks sind Stapelfehler auf $\{111\}$ -Ebenen, die einen Winkel von $15,79^\circ$ zur Si(001)-Ebene aufweisen, bzw. plättchenförmiges Wachstum in Form von Zwillingslamellen zweiter Ordnung. Im vorliegenden Fall kann jedoch die Existenz von Zwillingen zweiter Ordnung ausgeschlossen werden, da das Beugungsbild keine entsprechenden Reflexe aufweist.

Gemäß der Simulation in Abb. 5.15(c) kann das aufgenommene Beugungsbild eine vierte Streakrichtung enthalten, wobei Korntyp 2 in der dort abgebildeten Zwillingsorientierung erster Ordnung vorliegt. Da aber entsprechend orientierte Kristallite im begrenzten Probenbereich für die Feinbereichsbeugung nicht vorhanden waren, sind die entsprechenden Streaks in Abb. 5.11 nicht zu beobachten.

Das in der Beugungsaufnahme erkennbare leichte Auffächern von Streaks ist auf 3C-SiC-Kristallite zurückzuführen, die um wenige Grad aus der epitaktischen Orientierung herausgedreht sind. Die Rotationsachse liegt dabei parallel zur $[110]$ Si-Richtung.

Topographie und Rauigkeit der hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schicht wurde mittels Rasterkraftmikroskopie untersucht. Abb. 5.12 zeigt einen $1\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$ großen Bereich der Probenoberfläche, der die Zusammensetzung der Schicht aus einzelnen epitaktisch orientierten Körnern verdeutlicht.

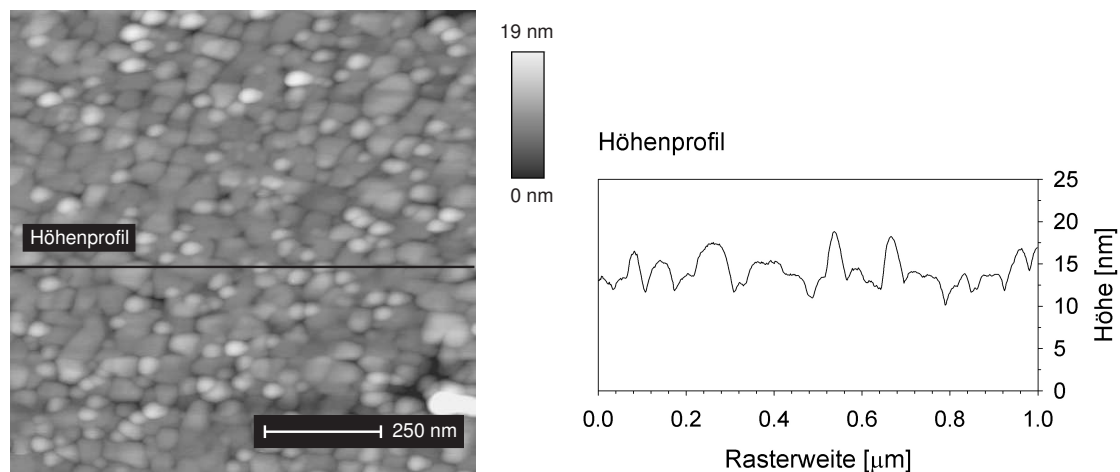


Abb. 5.12: AFM-Aufnahme an einer hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schicht auf Si(001). Die Rasterweite beträgt $1\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$

Die Größe der Kristallite ist zum Teil sehr unterschiedlich, die laterale Ausdehnung überschreitet aber in der Regel 100 nm nicht.

Es liegt die Vermutung nahe, dass größere Kristallite in der Regel dem Korntyp 1 angehören. Setzt man in der schematischen Darstellung zum Kornwachstum in Abb. 5.10 voraus, dass die Wachstumsgeschwindigkeit entlang der Stapelrichtung für Korntyp 1 und 2 gleich ist, so ergibt sich aufgrund des unterschiedlichen Winkels der gestapelten $\{111\}$ -Ebenen zur Si(001)-Oberfläche eine höhere laterale Wachstumsgeschwindigkeit für Korntyp 1 als für Korntyp 2. Analog dazu kann geschlossen werden, dass Körner vom Typ 2 eher kleinere geometrische Abmessungen parallel

zur Schichtoberfläche aufweisen.

Es bleibt jedoch zu beachten, dass das laterale Wachstum beider SiC-Korntypen durch benachbarte Kristallite begrenzt wird. Entsprechend kann eine prinzipielle Zuordnung zwischen Korntyp und -größe nicht erfolgen.

Die RMS-Rauigkeit der betrachteten 3C-SiC-Schicht wurde durch AFM-Aufnahmen an verschiedenen Stellen der Probenoberfläche im Mittel zu $(2,4 \pm 0,3)$ nm bestimmt. Wie in Abb. 5.12 zu erkennen ist, weisen jedoch insbesondere Kristallite mit großer lateraler Ausdehnung eine relativ glatte Oberfläche auf. Diese Beobachtung geht konform mit den Ergebnissen der TEM-Untersuchungen und erklärt darüber hinaus das Auftreten von senkrechten 3C-SiC-Streaks in den RHEED-Beugungsbildern. Das Höhenprofil in Abb. 5.12 macht klar, dass die Rauigkeit der gewachsenen Schicht hauptsächlich auf die unterschiedliche Höhe benachbarter Kristallite zurückzuführen ist. In den RHEED-Messungen werden diese hervorstehenden 3C-SiC-Kristallite vom Elektronenstrahl durchstrahlt und führen in den Beugungsbildern zu Transmissions-Beugungsreflexen, die den Streaks des 3C-SiC überlagert sind.

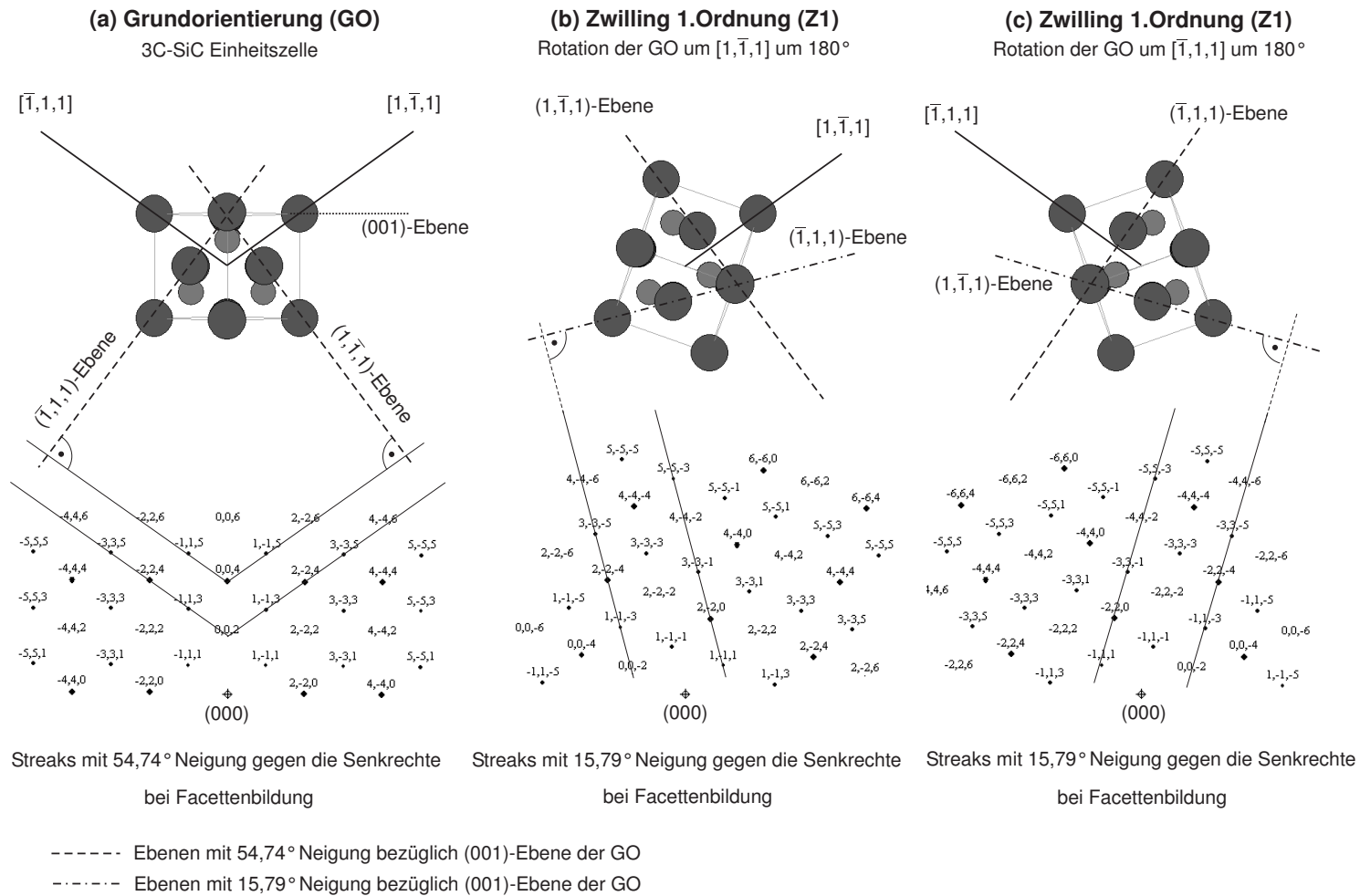


Abb. 5.13: Simulation der Transmissions-RHEED-Beugungsbilder im $[110]$ Azimut für das epitaktische 3C-SiC-Wachstum. Beugungsreflexe durch Zwillinge erster Ordnung werden durch eine 180° -Rotation der GO um die $[\bar{1}11]$ - bzw. um die $[1\bar{1}1]$ -Richtung konstruiert. Geneigte Streaks werden durch Facettenbildung verursacht.

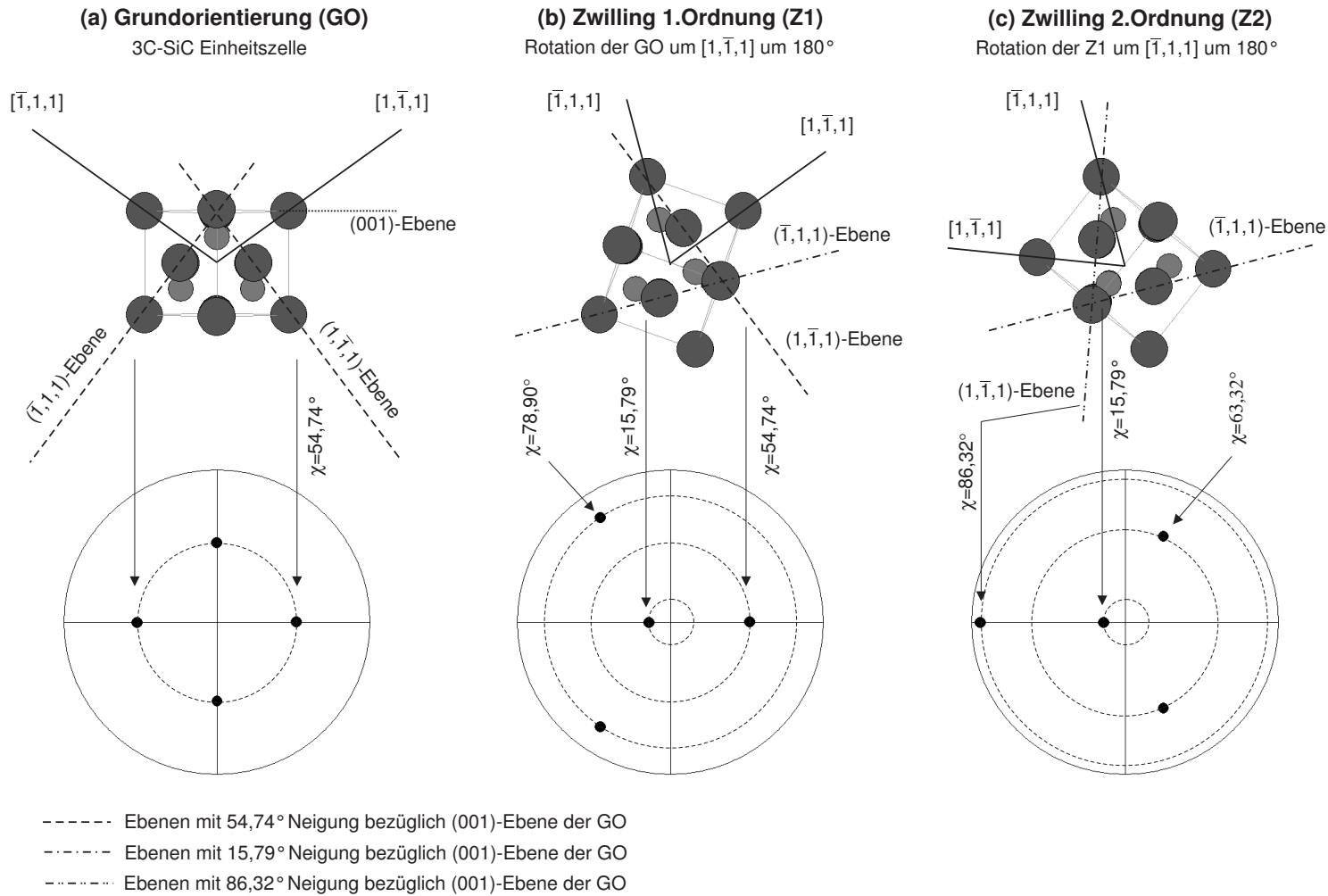


Abb. 5.14: Simulationen der $\{111\}$ -3C-SiC-Polfiguren. (a) $\{111\}$ -3C-SiC-Polfigur für (001)-orientiertes 3C-SiC der Grundorientierung (GO) (b) $\{111\}$ -3C-SiC-Polfigur für eine Zwillingorientierung erster Ordnung, die aus der Grundorientierung durch 180° -Rotation um die $[1\bar{1}1]$ -Richtung hervorgeht. (c) $\{111\}$ -3C-SiC-Polfigur für eine Zwillingorientierung zweiter Ordnung, die mit der Zwillingorientierung erster Ordnung in (b) über eine 180° -Rotation um die $[\bar{1}11]$ -Richtung korreliert ist.

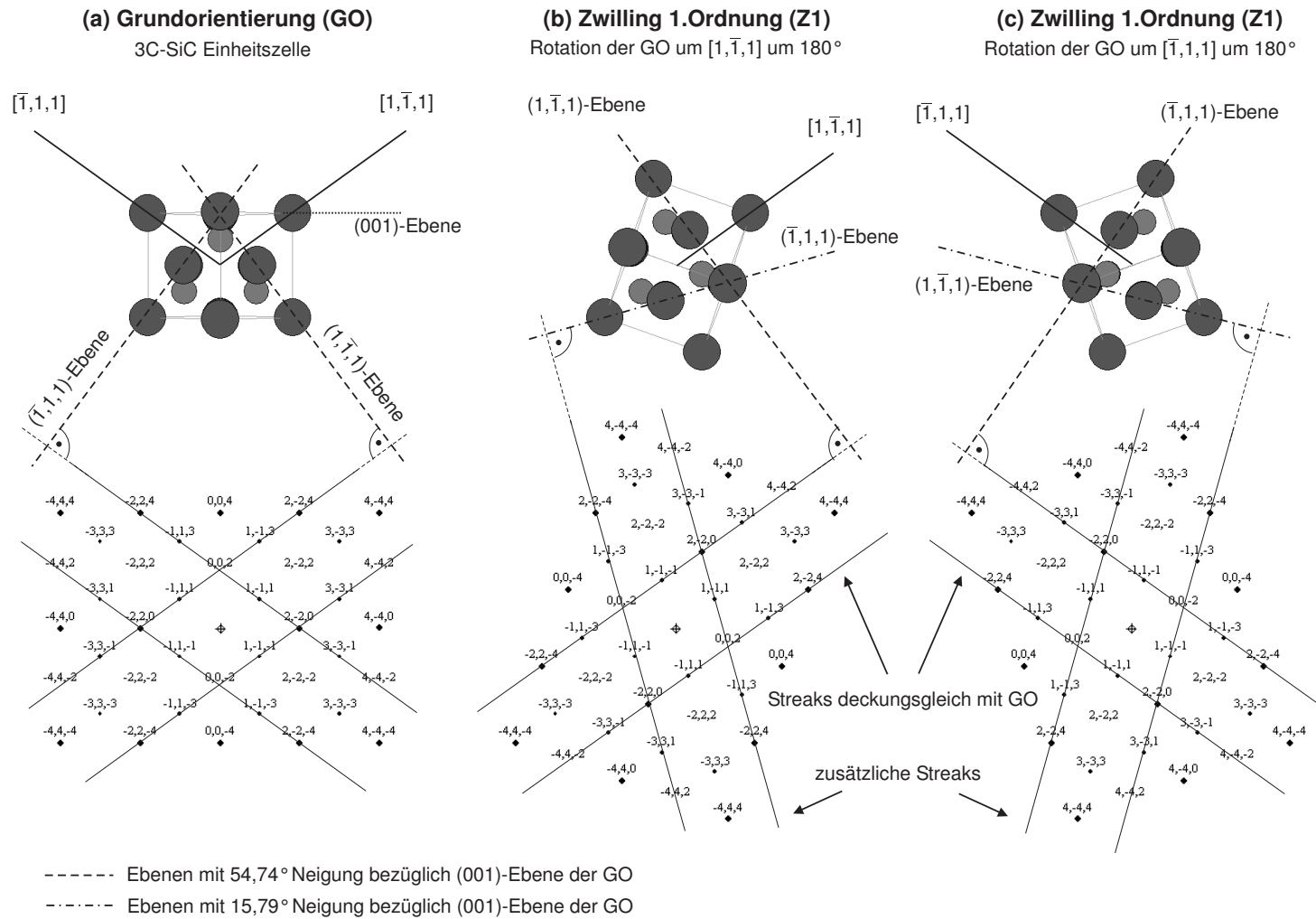


Abb. 5.15: Simulation der TEM-Beugungsbilder bezüglich der $[110]$ -Richtung der Grundorientierung (GO). Beugungsreflexe durch Zwillinge erster Ordnung werden durch eine 180° -Rotation der GO um die $[\bar{1}11]$ - bzw. um die $[1\bar{1}1]$ -Richtung konstruiert. Streaks in den Beugungsbildern sind auf Stapelfehler bzw. plättchenförmiges Wachstum in Form von Zwillinglamellen zurückzuführen. Die Streaks stehen senkrecht auf den Ebenen, auf denen Stapelfehler bzw. Zwillinglamellen liegen.

5.3 Entwicklung von Struktur und Textur über die Schichtdicke

Die Korrelation zwischen Struktur und Textur hohlraumfrei gewachsener 3C-SiC-Schichten und ihrer Schichtdicke wurde mit Hilfe der Röntgenbeugung untersucht. Im Rahmen dieser Experimente wurden 3C-SiC-Schichten auf Si(001) bei einer Substrattemperatur von 950°C und einem C₆₀-Fluss von $2,2 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ gewachsen. Im Anschluss an den Karbonisierungsschritt wurden C₆₀ und Si im Verhältnis Si:C=1:1 simultan aufgedampft. Durch Variation der Depositionsdauer wurden Schichtdicken von 150 nm, 300 nm und 550 nm realisiert.

Abb. 5.16 zeigt die Polfigurmessungen an den hohlraumfrei gewachsenen SiC-Schichten für einen Netzebenenabstand von $d = 0,251 \text{ nm}$, was sowohl den {111}-Reflexen des 3C-SiC als auch den {00n}-nH/R-SiC-Reflexen nicht-kubischer SiC-Polytypen entspricht. Bei einer Schichtdicke von $d_{\text{SiC}}=150 \text{ nm}$ werden Poldichtemaxima bei $\chi=16^\circ$, 55° und 79° beobachtet. Anhand der Simulation in Abb. 5.16(d) ist zu erkennen, dass diese Polfigur vollständig durch (001)-orientiertes 3C-SiC mit Zwillingen erster Ordnung erklärt werden kann.

Die Polfigurmessung für $d_{\text{SiC}}=550 \text{ nm}$ weist gegenüber oben genannter Messung für $d_{\text{SiC}}=150 \text{ nm}$ zusätzliche Poldichtemaxima bei $\chi=63^\circ$ und $\chi=86^\circ$ auf. Die Simulationen in Abb. 5.14 verdeutlichen, dass die betreffenden Poldichtemaxima auf Zwillingorientierungen zweiter Ordnung zurückzuführen sind, die durch Verzwillingung auf {111}-Ebenen mit einer Neigung von $15,79^\circ$ gegen die Si(001)-Oberfläche entstehen. Weitere theoretisch mögliche Orientierungen für Zwillinge zweiter Ordnung, die aus Verzwillingung auf {111}-Ebenen mit einer Neigung von $78,90^\circ$ gegen die Si(001)-Oberfläche resultieren, treten in der Polfigurmessung nicht in Erscheinung. Basierend auf den Ausführungen in Abschnitt 5.2 kann daraus gefolgert werden, dass die Zwillinge zweiter Ordnung ausschließlich in Form von Zwillinglamellen im Korntyp 2 vorliegen. Es sei darauf hingewiesen, dass in Abb. 5.14 beispielhaft nur eine der vier Zwillingorientierung zweiter Ordnung simuliert wurde, die für Korntyp 2 relevant sind. Eine vollständige Simulation der {111}-3C-SiC-Polfigur für Zwillinglamellen zweiter Ordnung findet sich in Abb. 5.16(d).

Die Polfigurmessung für $d_{\text{SiC}}=300 \text{ nm}$ zeigt die Übergangsphase zwischen Abb. 5.16(a) und Abb. 5.16(c). Es sind bereits vereinzelt Poldichtemaxima zu erkennen, die auf Zwillinglamellen zweiter Ordnung hinweisen, jedoch ist das Volumen dieser Orientierungen noch so gering, dass nicht alle der zugehörigen Poldichtemaxima beobachtet werden können.

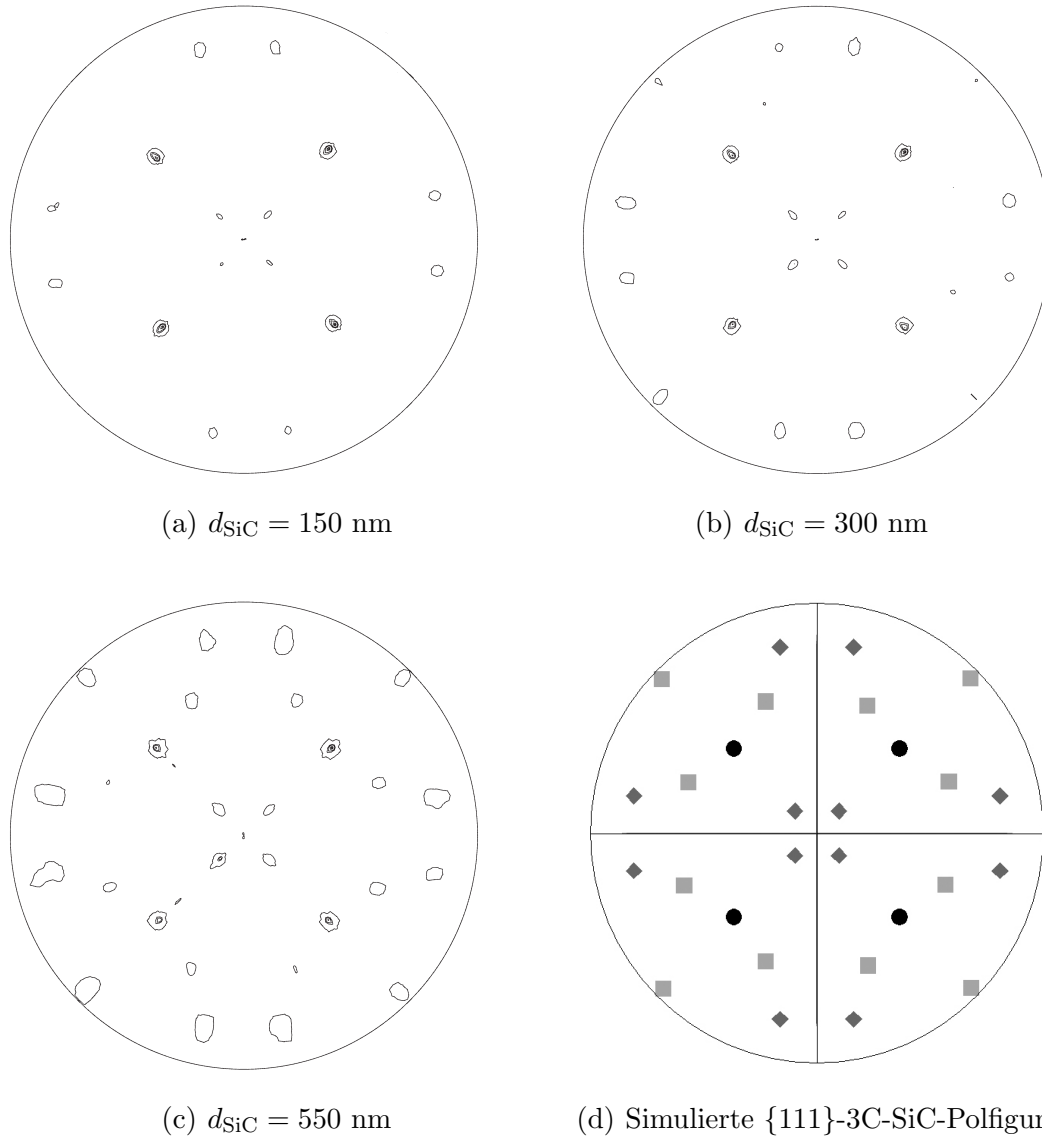


Abb. 5.16: Polfigurmessungen an hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schichten auf Si(001) für einen Netzebenenabstand von $d = 0,251 \text{ nm}$. Die Messungen erlauben eine Unterscheidung zwischen α -SiC und β -SiC, da Poldichtemaxima sowohl durch $\{111\}$ -3C-SiC- als auch durch $\{00n\}$ -nH/R-SiC-Reflexe verursacht werden können. (a) Messung an einer 150 nm dicken SiC-Schicht mit Poldichtemaxima bei $\chi=16^\circ$, 55° und 79° (b) Messung an einer 300 nm dicken SiC-Schicht mit Poldichtemaxima bei $\chi=16^\circ$, 55° , 63° , 79° und 86° . (c) Messung an einer 550 nm dicken SiC-Schicht mit Poldichtemaxima bei $\chi=16^\circ$, 55° , 63° , 79° und 86° . (d) Simulierte $\{111\}$ -3C-SiC-Polfigur. Pole (\circ) bei $\chi=54,74^\circ$ sind auf (001)-orientiertes 3C-SiC zurückzuführen. Pole (\diamond) bei $\chi=15,79^\circ$ und $78,90^\circ$ entsprechen Zwillingen erster Ordnung. Pole (\square) bei $\chi=63,32^\circ$ und $86,32^\circ$ resultieren aus Zwillingen zweiter Ordnung, die in Form von Zwillinglamellen im Korntyp 2 vorliegen.

Zusammenfassend kann also festgestellt werden, dass die 3C-SiC-Schichten bei geringer Schichtdicke lediglich Zwillinge erster Ordnung enthalten. Bei größeren Schichtdicken treten jedoch zusätzlich Zwillinge zweiter Ordnung in Form von Zwillingsslamellen im Korntyp 2 auf.

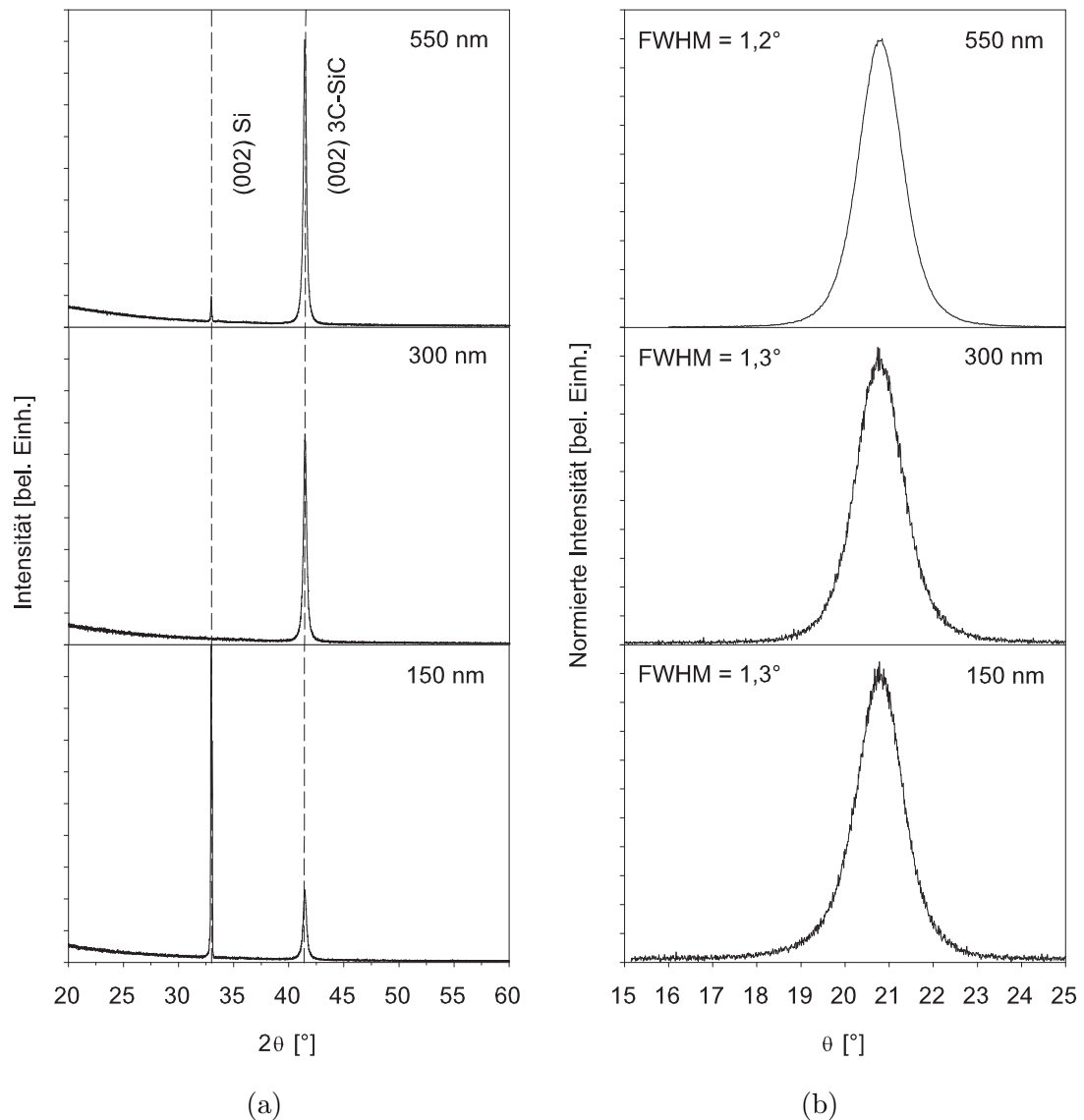


Abb. 5.17: (a) θ -2 θ -Röntgen-Beugungsdiagramme an hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schicht auf Si(001) mit unterschiedlichen Schichtdicken (b) Rocking-Kurve des (002)-Reflexes von 3C-SiC für unterschiedliche Schichtdicken

Wertet man die Intensitäten der Poldichtemaxima in Abb. 5.16(a) bis (c) aus, so ist festzustellen, dass das Volumenverhältnis von Grundorientierung und Zwillinge erster Ordnung in Abhängigkeit von der Schichtdicke relativ konstant bleibt.

Aufgrund des Wachstums der Schichten mit zwei unterschiedlichen Korntypen ist dieses Verhalten zu erwarten. Körner des Typs 1 bestehen überwiegend aus der epitaktischen Grundorientierung. Kristallite, die dem Typ 2 zuzuordnen sind, beinhalten hauptsächlich Zwillinge erster Ordnung. Das Volumenverhältnis der beiden Orientierungen ist demzufolge näherungsweise durch das Volumenverhältnis der Körner gegeben, die Typ 1 bzw. Typ 2 angehören. Im Laufe des Schichtwachstums bleibt dieses Verhältnis relativ konstant, da die laterale Ausdehnung der Körner ungefähr gleich bleibt und ihre Höhe durch die Schichtdicke bestimmt wird.

Dennoch bleibt zu beachten, dass anhand der vorliegenden Messdaten für drei verschiedene 3C-SiC-Schichtdicken keine eindeutige Aussage über die Entwicklung des Volumenanteils der Zwillinge erster Ordnung getroffen werden kann. Die Klärung dieser Frage erfordert weitere umfangreiche Texturuntersuchungen an einer größeren Anzahl von Proben mit unterschiedlicher 3C-SiC-Schichtdicke.

Gleiches gilt bezüglich des Volumenanteils der Zwillinge zweiter Ordnung in den Schichten.

Abb. 5.17(a) zeigt die θ - 2θ -Beugungsdiagramme an den betrachteten hohlraumfrei gewachsenen 3C-SiC-Schichten. In Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Polfigurmessungen ist als Schichtreflex lediglich der (002)-Reflex des 3C-SiC zu beobachten. Die Rocking-Kurven in Abb. 5.17(b) an diesem Reflex liefern ein Maß für die mittlere Verkipfung der 3C-SiC-Kristallite um die Probennormale. Hierbei werden allerdings nur Kristallite vom Korntyp 1 berücksichtigt, in denen das 3C-SiC in der epitaktischen Hauptorientierung vorliegt. Kristallite vom Korntyp 2 haben keinen Einfluss auf die dargestellten Rocking-Kurven, da die dort vorliegenden Zwillingorientierungen nicht zum (002)-3C-SiC-Reflex in Abb. 5.17(a) beitragen.

Die Halbwertsbreiten der Rocking-Kurven verdeutlichen, dass im Schichtdickenbereich von 150 nm bis 550 nm keine wesentliche Verbesserung der epitaktischen Orientierung stattgefunden hat. Aus den TEM-Untersuchungen in Abschnitt 5.2 ist bekannt, dass benachbarte Kristallite in den SiC-Schichten zum Teil unterschiedlichen Korntypen angehören. Eine Texturverbesserung für Korntyp 1 durch das Überwachsen von leicht fehlorientierten Nachbarkristalliten des gleichen Typs wird dadurch erschwert. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden 3C-SiC-Schichten auf Si(001) lediglich bis zu einer maximalen Schichtdicke von 550 nm hergestellt und röntgenographisch untersucht. Die Möglichkeit einer deutlichen Texturverbesserung bei Schichtdicken von einigen Mikrometern bleibt experimentell noch zu überprüfen.

Kapitel 6

Homoepitaxie auf 3C-SiC(001)-Pseudosubstraten

6.1 3C-SiC-Pseudosubstrate

6.1.1 Herstellung durch Ionenstrahlsynthese

Zur Untersuchung des homoepitaktischen Wachstums von 3C-SiC-Schichten bei Verwendung einer C_{60} -Kohlenstoffquelle wurden 3C-SiC-Pseudosubstrate verwendet, die mittels Ionenstrahlsynthese hergestellt wurden. Bei diesem Verfahren wird durch Hochdosiskohlenstoffimplantation in ein Siliziumsubstrat und anschließendes Tempern zunächst eine vergrabene epitaktische 3C-SiC-Schicht erzeugt. Danach wird mit einer speziell hierfür entwickelten Methode die Si-Deckschicht entfernt [130]. Um eine möglichst glatte SiC-Oberfläche zu erhalten, wird durch Implantation von Helium eine amorphe Schicht hergestellt, die sowohl einen Teil der Si-Deckschicht als auch den oberen Teil der 3C-SiC-Schicht umfasst. Dabei entsteht eine scharfe Grenzfläche zwischen amorphisiertem und kristallinem SiC. Im nächsten Schritt wird das amorphisierte Schichtsystem und das darüber befindliche kristalline Si durch Ätzen mit HF/HNO_3 im Mischungsverhältnis 1:5 entfernt. Das kristalline 3C-SiC wird von den Säuren nicht angegriffen und fungiert somit als Ätzstopp. Abschließend werden die Substrate mehrfach mit deionisiertem Wasser gespült, um Reste der Ätzlösung von der Oberfläche zu entfernen. Eine umfassende Darstellung zur Ionenstrahlsynthese von 3C-SiC-Pseudosubstraten findet sich in [131].

In der vorliegenden Arbeit wurden 3C-SiC(001)-Pseudosubstrate verwendet, die durch C^+ -Implantation in Si(001) bei einer Energie von 180 keV hergestellt wurden. In Substrat 1 betrug die implantierte Dosis $7,2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$, in Substrat 2

$6,4 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$. Die Implantation erfolgte in beiden Fällen bei 500°C . Getempert wurde für 10 Stunden bei 1250°C . Zur Freilegung der vergrabenen 3C-SiC-Schichten wurde He^+ mit einer Energie von 55 keV bei 0°C implantiert. Die eingebrachte Dosis betrug dabei $8,0 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$.

Die Dicke der freigelegten 3C-SiC-Schichten wurde mit Hilfe von XTEM-Untersuchungen bestimmt. Für beide Pseudosubstrate ergab sich ein Wert von 50 nm.

6.1.2 Eigenschaften der verwendeten Substrate

Vor der Schichtabscheidung wurden die verwendeten 3C-SiC(001)-Pseudosubstrate hinsichtlich Struktur, Textur und Oberflächenbeschaffenheit untersucht. Im nachfolgenden findet sich eine Zusammenstellung der Messergebnisse, wobei die beiden mit unterschiedlichen Kohlenstoffdosen hergestellten Substrate entsprechend Abschnitt 6.1.1 als Substrat 1 und Substrat 2 bezeichnet werden.

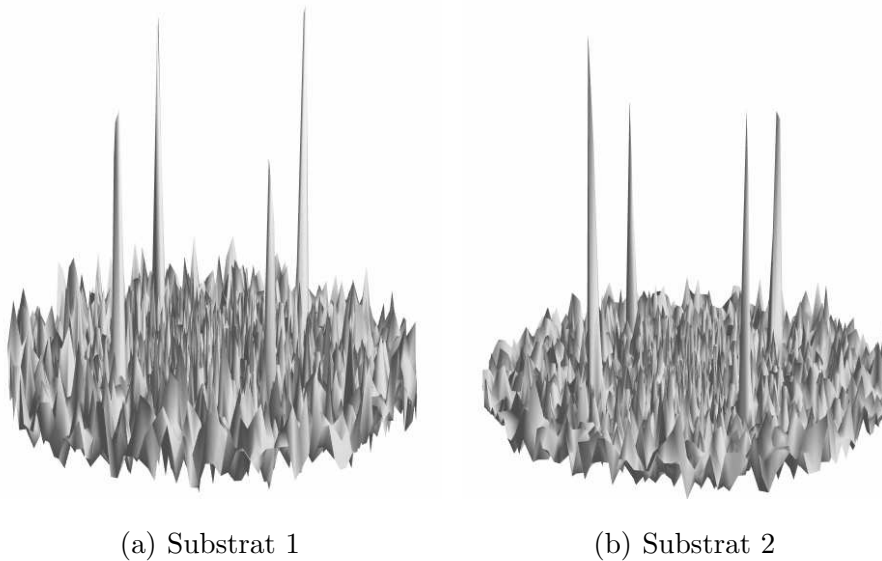


Abb. 6.1: Polfigurmessung an 3C-SiC(001)-Pseudosubstraten für einen Netzebenenabstand von $d = 0,251 \text{ nm}$. Die eingestellte Beugungsbedingung gestattet eine Unterscheidung zwischen α -SiC und β -SiC, da Poldichtemaxima sowohl durch $\{111\}$ -3C-SiC- als auch durch $\{00n\}$ - $n\text{H/R-SiC}$ -Reflexe verursacht werden können. (a) Substrat 1 und (b) Substrat 2 mit jeweils vier Poldichtemaxima bei $\chi=55^\circ$

In Abb. 6.1 sind die Polfigurmessungen für einen Netzebenenabstand von $d = 0,251 \text{ nm}$ dargestellt, was sowohl den $\{111\}$ -Reflexen des 3C-SiC als auch den $\{00n\}$ - $n\text{H/R-SiC}$ -Reflexen nicht-kubischer SiC-Polytypen entspricht. Beide Substrate weisen lediglich vier Poldichtemaxima bei $\chi=55^\circ$ auf, die gemäß der Simulation in Abb. 5.16(d) durch (001)-orientiertes 3C-SiC erklärt werden können. Aus [131] ist

die Orientierungsbeziehung

$$(001) [110] \text{ Si} \parallel (001) [110] \text{ 3C-SiC}$$

für ionenstrahlsynthetisierte 3C-SiC-Pseudosubstrate bekannt.

Das hohe Untergrundrauschen in den Messungen ist einerseits auf das schlechte Signalrauschverhältnis zurückzuführen, das aus den geringen 3C-SiC-Schichtdicken von 50 nm resultiert, andererseits weist es aber auch auf die Existenz von Fehlorientierungen hin.

Es gilt zu beachten, dass in den Polfigurmessungen keine Zwillingsreflexe vorhanden sind. Dies ist typisch für 3C-SiC-Pseudosubstrate, die durch Ionenstrahlsynthese hergestellt wurden. Bei der SiC-Bildung in der Matrix des Si-Substrats wird das Auftreten von Wachstumszwillingen vollständig vermieden [131]. Dies ist von entscheidendem Vorteil für das homoepitaktische Schichtwachstum, da störende Zwillingsorientierungen nicht aus dem Substrat übernommen werden können.

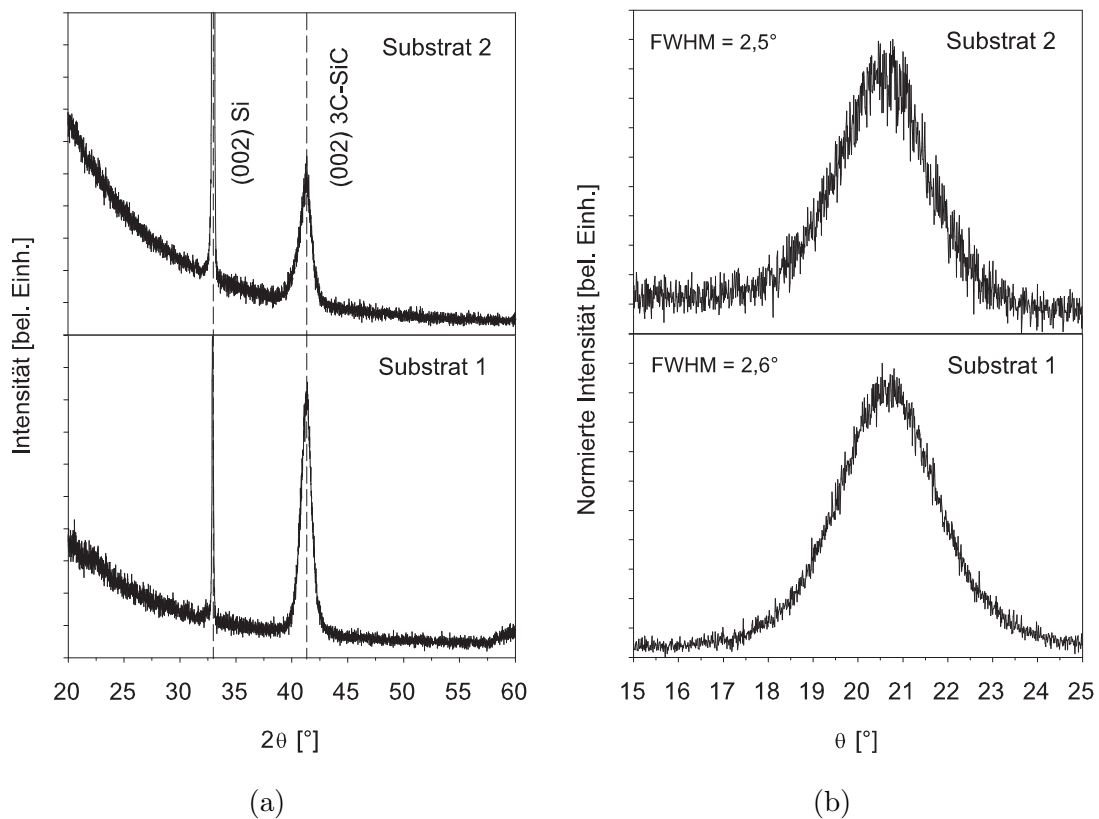


Abb. 6.2: (a) θ - 2θ -Röntgen-Beugungsdiagramme an 3C-SiC(001)-Pseudosubstraten (b) Rocking-Kurven des (002)-Reflexes von 3C-SiC

Die θ - 2θ -Beugungsdiagramme in Abb. 6.2(a) zeigen in Übereinstimmung mit den Polfigurmessungen als Schichtreflex lediglich den (002)-Reflex des 3C-SiC. Die zugehörige Rocking-Kurve (s. Abb. 6.2(b)) weist für Substrat 1 eine Halbwertsbreite von $2,6^\circ$ und für Substrat 2 eine Halbwertsbreite von $2,5^\circ$ auf. Beide Substrate besitzen folglich einen hohen Anteil an 3C-SiC-Kristalliten, die leicht aus ihrer epitaktischen Orientierung herausgekippt sind.

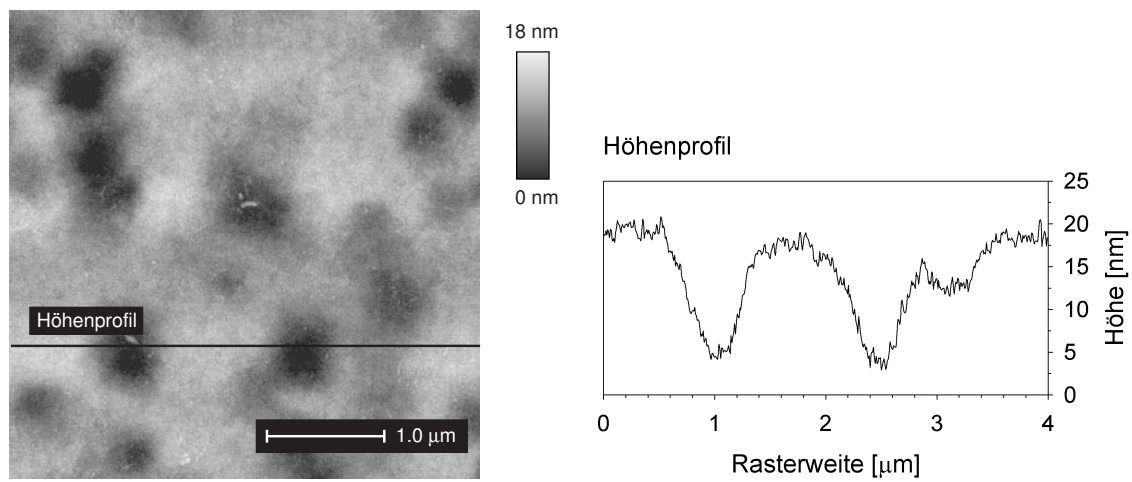


Abb. 6.3: AFM-Aufnahme an Substrat 2 mit einer Rasterweite von $4\text{ }\mu\text{m} \times 4\text{ }\mu\text{m}$. Die Oberfläche weist eine hohe Dichte an Mulden auf, die sich in Form von dunkleren Bereichen widerspiegeln. Der Verlauf des Höhenprofils lässt schließen, dass die Rauigkeit der Oberfläche überwiegend durch diese Vertiefungen verursacht wird.

Die Topographie der 3C-SiC-Pseudosubstrate wurde mit Hilfe der Rasterkraftmikroskopie untersucht, wobei in beiden Fällen eine vergleichbare Oberflächenbeschaffenheit beobachtet werden konnte. Abb. 6.3 zeigt beispielhaft einen $4\text{ }\mu\text{m} \times 4\text{ }\mu\text{m}$ großen Bereich der Oberfläche von Substrat 2. Es ist eine hohe Dichte an Mulden zu erkennen, die eine typische Kantenlänge von einigen hundert Nanometern besitzen. Ihre Tiefe liegt überwiegend im Bereich von 10 bis 20 nm. Das AFM-Höhenprofil verdeutlicht, dass die Rauigkeit der Oberfläche überwiegend auf die Existenz der Vertiefungen zurückzuführen ist. Durch Auswertung von AFM-Aufnahmen an verschiedenen Probenstellen wurde die RMS-Rauigkeit für Substrat 1 zu $(3,1 \pm 0,8)\text{ nm}$ und für Substrat 2 zu $(3,0 \pm 0,3)\text{ nm}$ bestimmt.

Um die Oberflächenqualität der 3C-SiC(001)-Pseudosubstrate großflächig überprüfen zu können, wurden zusätzlich REM-Aufnahmen angefertigt. Dabei konnten ebenfalls keine signifikanten Unterschiede zwischen Substrat 1 und 2 festgestellt werden. In Abb. 6.4 sind beispielhaft zwei Probenbereiche auf Substrat 2 dargestellt. Die

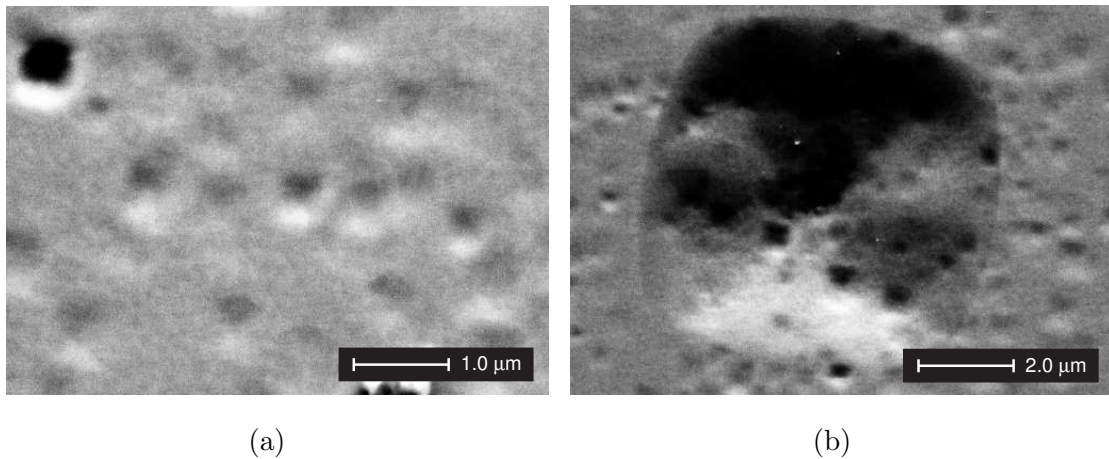


Abb. 6.4: REM-Aufnahme an Substrat 2 für homoepitaktisches Wachstum. Zur Abbildung wurde der seitliche SE-Detektor verwendet. (a) Der Probenbereich zeigt eine hohe Dichte an Mulden, die den Vertiefungen in Abb. 6.3 entsprechen. (b) Detailansicht eines der großen Löcher, die vereinzelt auf der Substratoberfläche zu beobachten sind.

gesamte Oberfläche weist eine hohe Dichte an Mulden (s. Abb. 6.4(a)) auf, wie sie bereits in den AFM-Aufnahmen beobachtet werden konnten. Daneben befinden sich in der Substratoberfläche auch vereinzelt große Löcher (s. Abb. 6.4(b)) mit typischer Kantenlänge von einigen Mikrometern. Ihre Tiefe liegt laut AFM-Höhenprofilen im Bereich von einigen hundert Nanometern, woraus geschlossen werden kann, dass sie sich bis in das Si-Substrat hinein erstrecken.

Beide Typen von Defekten in der Substratoberfläche sind auf Probleme in der Prozessführung zurückzuführen, welche die Freilegung der vergrabenen 3C-SiC-Schichten betrifft. Eine Darstellung der zugrunde liegenden Problematik im Detail soll in dieser Arbeit nicht erfolgen.

6.2 Einfluss der Oberflächenbeschaffenheit

RHEED-Untersuchungen an den 3C-SiC(001)-Pseudosubstraten haben gezeigt, dass ihre gemäß Abschnitt 6.1.1 freigelegten Oberflächen ohne zusätzlichen Präparationsschritt nicht für die homoepitaktische Schichtabscheidung geeignet sind. In Abb. 6.5(a) ist beispielhaft das RHEED-Beugungsbild an Substrat 2 entlang [110]3C-SiC dargestellt, wie es für die unbehandelte Oberfläche typisch ist. Es sind lediglich schwache Beugungsreflexe zu erkennen, die vom diffusen Untergrund nahezu überstrahlt werden. Daraus kann geschlossen werden, dass die kristalline 3C-SiC-Oberfläche von einer dünnen amorphen Schicht bedeckt ist, die vermutlich aus Kohlenstoff und Silizium besteht.

Um diese störende amorphe Deckschicht zu entfernen und eine Oberflächenqualität zu erhalten, die für homoepitaktisches Wachstum geeignet ist, wurden zwei alternative Präparationsmethoden angewandt. Im einen Fall wurde das Substrat mit Aceton und Isopropanol im Ultraschallbad gereinigt und anschließend mit trockenem Stickstoff abgeblasen. Nach dem Einbau in die Depositionskammer wurde es für 150 min bei 950°C unter Hochvakuumbedingungen ausgeheizt. Im anderen Fall erfolgte die Reinigung mit Hilfe eines Wasserstoffplasmas in einer Mikrowellen-CVD-Anlage. Die hierfür verwendeten Parameter sind Tab. 7.2 im Anhang zu entnehmen.

In Abhängigkeit von der verwendeten Präparationsmethode konnten deutliche Unterschiede im homoepitaktischen 3C-SiC-Schichtwachstum festgestellt werden. Im nachfolgenden wird dies anhand von vergleichenden Messergebnissen am Beispiel von Substrat 2 aufgezeigt. Für die Schichtabscheidung wurden in beiden Fällen identische Parameter gewählt. C₆₀ und Si wurden im Verhältnis Si:C=1:1 für 210 min simultan aufgedampft. Der C₆₀-Fluss betrug dabei $1,3 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, die Substrattemperatur wiederum 950°C.

Abb. 6.5(b) bzw. 6.5(e) zeigt das RHEED-Beugungsbild im [110]-Azimut unmittelbar vor Beginn der Schichtabscheidung. Beide Präparationsmethoden haben zum Verschwinden des diffusen Untergrundes in den Messungen geführt, was auf die Entfernung der amorphen Deckschicht hinweist. Die jetzt deutlich sichtbaren Beugungsreflexe können anhand der Simulationen in Abb. 5.13 vollständig durch (001)-orientiertes 3C-SiC erklärt werden. Zwillingsreflexe sind gemäß den Ausführungen in Abschnitt 6.1.2 nicht zu beobachten. Die überlagerten Streaks in Abb. 6.5(e) verdeutlichen, dass sich durch die Vorbehandlung im Wasserstoffplasma eine glattere 3C-SiC-Oberfläche gebildet hat, als dies beim ausgeheizten Substrat der Fall ist. Dennoch weisen auch hier Transmissions-Beugungsreflexe auf verbliebene Rauigkeiten hin.

Nach 15 min simultaner Deposition von C₆₀ und Si ergeben sich für die beiden unterschiedlich präparierten Substrate ähnliche RHEED-Aufnahmen. Die Beugungsreflexe verdeutlichen, dass 3C-SiC epitaktisch aufgewachsen ist. Das Verschwinden der Streaks im Übergang von Abb. 6.5(e) zu 6.5(f) lässt darauf schließen, dass dies in Form von epitaktisch orientierten 3C-SiC Körnern geschieht, was zu einer Aufräufung der Probenoberfläche führt. Ein 3C-SiC-Lagenwachstum kann unter den herrschenden Wachstumsbedingungen unabhängig von der Substratpräparation nicht beobachtet werden. Die geneigten Streaks in Abb. 6.5(c) und Abb. 6.5(f) sind gemäß den Simulationen in Abb. 5.13 auf {111}-Facetten der 3C-SiC-Grundorientierung zurückzuführen und besitzen folglich eine Neigung von 54,74° gegen die Senkrechte.

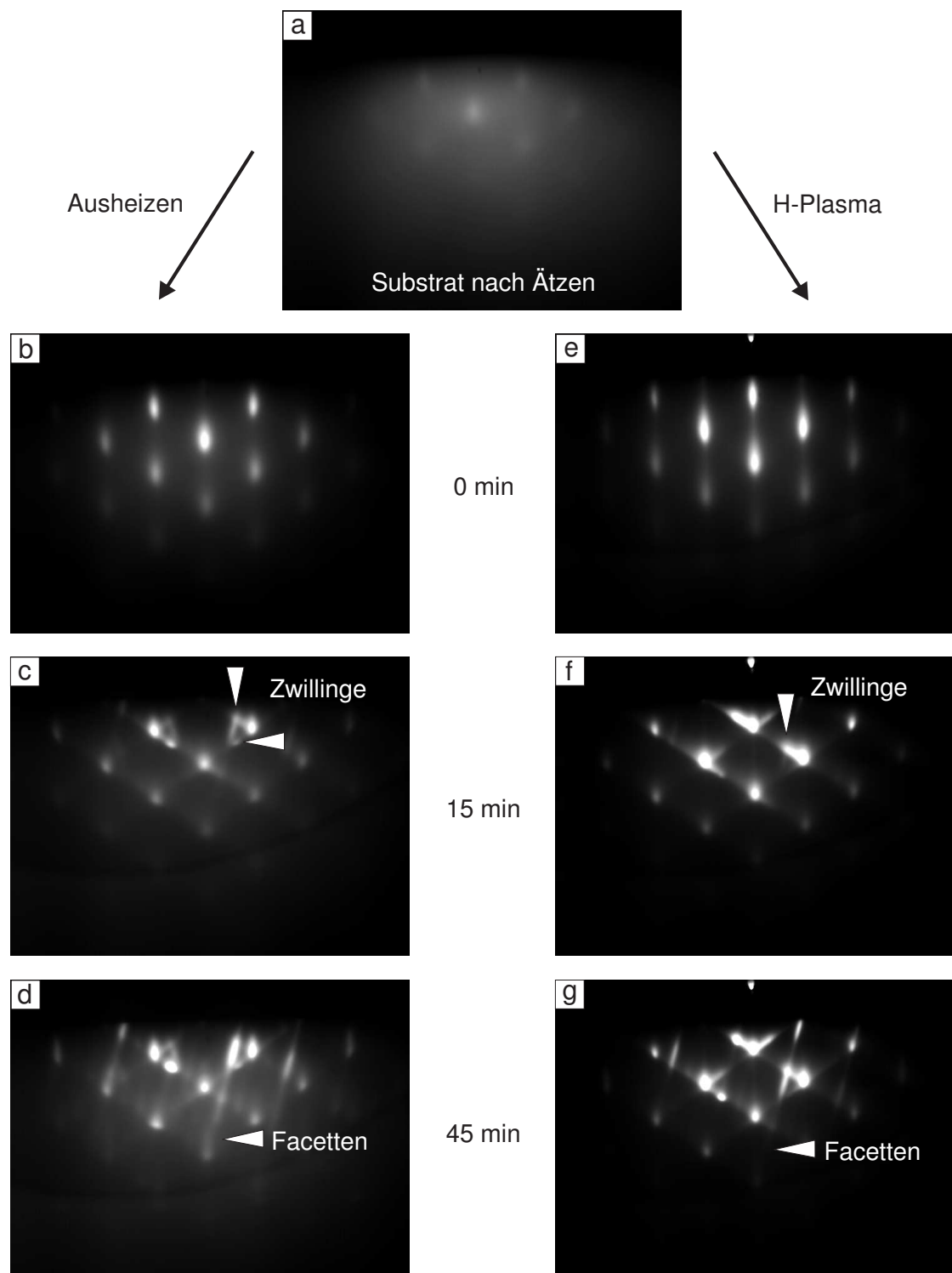


Abb. 6.5: RHEED-Beugungsbilder im $[110]$ -Azimut während des homoepitaktischen 3C-SiC-Schichtwachstums auf Substrat 2. links: Schichtabscheidung auf dem ausgeheizten Substrat; rechts: Schichtabscheidung auf dem plasmagereinigten Substrat

Darüber hinaus weisen beide Beugungsbilder für 15 min Deposition bereits Zwillingsreflexe erster Ordnung auf.

Nach 45 min der Schichtabscheidung zeigt sich, dass die $54,74^\circ$ -Streaks durch wesentlich steiler verlaufende abgelöst werden. Mit Hilfe der Abb. 5.13 können diese neuen Streaks mit einer Neigung von $15,79^\circ$ gegen die Senkrechte ebenfalls auf $\{111\}$ -Facetten zurückgeführt werden. Allerdings sind die betreffenden $\{111\}$ -Ebenen in diesem Fall den 3C-SiC-Zwillingen erster Ordnung zuzuordnen. In Analogie zu den RHEED-Untersuchungen zur Heteroepitaxie in Abschnitt 5.2 kann auch im vorliegenden Fall ein 3C-SiC-Wachstum mit zwei charakteristischen Korntypen nach Abb. 5.10 vermutet werden. Zu beachten ist, dass die $15,79^\circ$ -Streaks für das ausgeheizte Substrat wesentlich deutlicher in Erscheinung treten als dies für das Substrat der Fall ist, das im Wasserstoffplasma vorbehandelt wurde. Diese Diskrepanz konnte bis zum Ende der Schichtabscheidung nach 210 min in den RHEED-Beugungsbildern beobachtet werden.

Auffällig in Abb. 6.5(d) und Abb. 6.5(g) ist, dass lediglich eine der beiden möglichen Richtungen für $15,79^\circ$ -Streaks deutlich zu erkennen ist. Sie entspricht der Simulation in Abb. 5.13(c). Die zweite Streakrichtung, die mit Abb. 5.13(b) verknüpft ist, trat über den gesamten Depositionsprozess nur mit sehr geringer Intensität auf. Da dies für beide Präparationsmethoden der Fall war, kann vermutet werden, dass die asymmetrische Intensitätsverteilung darin begründet liegt, dass der Elektronenstrahl der RHEED-Analytik nicht exakt entlang $[110]_{3C-SiC}$ ausgerichtet war.

Die Dicke der homoepitaktisch gewachsenen 3C-SiC-Schicht wurde mittels XTEM für das ausgeheizte Substrat zu 190 nm und für das plasmagereinigte Substrat zu 200 nm bestimmt. Berücksichtigt man die 3C-SiC-Schichtdicke von 50 nm für das verwendete Substrat 2, so ergibt sich eine Gesamtschichtdicke von 240 nm bzw. 250 nm. Die Stöchiometrie der Schichten wurde mit Hilfe von ERDA überprüft. Die gemessenen Tiefenprofile sind in Abb. 6.6 und Abb. 6.7 dargestellt.

In beiden Fällen ist über die gesamte SiC-Schichtdicke hinweg eine Si:C=1:1 Stöchiometrie zu beobachten. Lediglich für die Schicht, die auf dem plasmagereinigten Substrat gewachsen wurde, zeigt das ERDA-Tiefenprofil einen erhöhten Kohlenstoffanteil an der Oberfläche. Diese Abweichung von der gewünschten Stöchiometrie konnte auch in einigen anderen ERDA-Tiefenprofilen festgestellt werden, die im Rahmen dieser Arbeit an 3C-SiC-Schichten gemessen wurden.

Vermutlich kann während des Abkühlvorgangs nach der Schichtabscheidung unter Umständen noch eine geringe Menge an C_{60} auf die 3C-SiC-Oberfläche treffen. Die Fullerenmoleküle stammen dabei nicht aus der Effusionszelle, da der Substratshut-

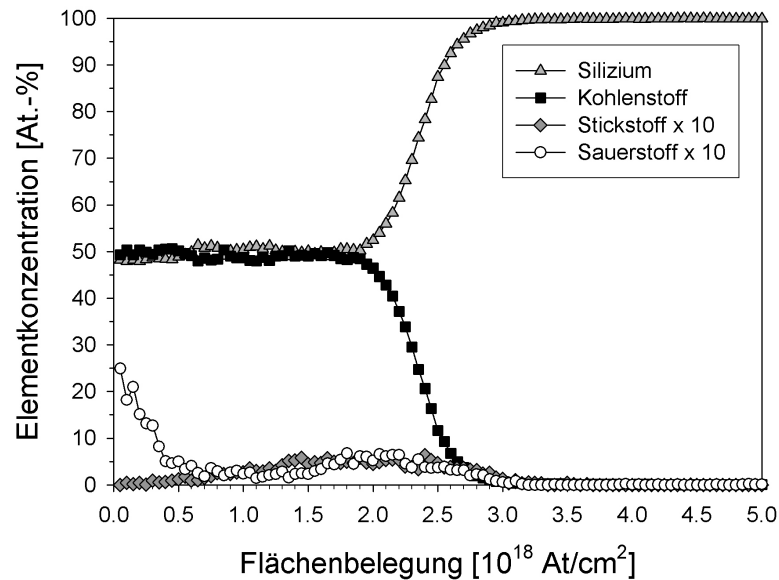


Abb. 6.6: ERDA-Tiefenprofil an einer 190 nm dicken 3C-SiC-Schicht auf Substrat 2. Die Substratpräparation wurde durch Ausheizen im Hochvakuum vorgenommen. Die 3C-SiC-Schichtdicke im 3C-SiC-Pseudosubstrat beträgt 50 nm, so dass eine Gesamtschichtdicke von 240 nm resultiert.

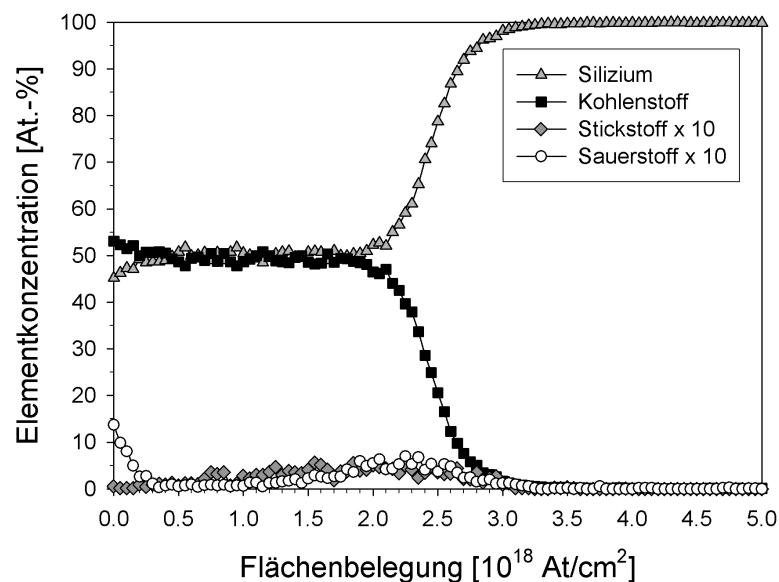


Abb. 6.7: ERDA-Tiefenprofil an einer 200 nm dicken 3C-SiC-Schicht auf Substrat 2. Die Reinigung der Substratoberfläche erfolgte mit Hilfe eines Wasserstoffplasmas. Mit einer 3C-SiC-Schichtdicke von 50 nm im Pseudosubstrat beträgt die Gesamtschichtdicke 250 nm.

ter schon geschlossen wurde, sondern desorbieren vom Substratheizer. Die Problematik ist vergleichbar zu der in Abschnitt 5.2 beschriebenen frühzeitigen Bildung von 3C-SiC in der Aufheizphase. Die Menge der noch unerwünscht aufgedampften C_{60} -Moleküle hängt dabei stark von der Bedeckung des Heizers mit C_{60} aus den vorangegangenen Depositionsprozessen ab. Im ERDA-Tiefenprofil führt diese Problematik zu einer scheinbaren Abweichung von der Si:C=1:1 Stöchiometrie an der SiC-Schichtoberfläche.

Die Tiefenprofile in Abb. 6.6 und Abb. 6.7 zeigen weiterhin einen relativ breiten Übergangsbereich zwischen SiC-Schicht und Si-Substrat. Ursache hierfür ist die Rauigkeit der SiC-Oberfläche und der SiC/Si Grenzfläche im 3C-SiC-Pseudosubstrat. Sie führt dazu, dass die SiC-Schichtdicke lokal im untersuchten Bereich variiert, und bewirkt somit eine Abflachung der Kante im Tiefenprofil.

Ferner ist zu erkennen, dass die homoepitaktisch gewachsenen Schichten eine geringe Kontamination mit maximal 0,5 at% Stickstoff und Sauerstoff aufweisen. Der Einbau der Fremdatome resultiert dabei aus dem Restgasdruck während des Depositionsprozesses. Der erhöhte Sauerstoffanteil von etwa 2,5 at% bzw. 1,5 at% an der Oberfläche kann durch eine geringe Bedeckung der Schichten mit Wasser begründet werden.

Um festzustellen, inwiefern die Substratpräparation Einfluss auf Struktur und Textur der gewachsenen SiC-Schichten nimmt, wurden die beiden hergestellten Proben röntgenographisch untersucht.

Abb. 6.8 zeigt die Polfigurmessung für die Präparation durch Ausheizen im Hochvakuum. Die Bragg-Bedingung wurde hier für einen Netzebenenabstand von $d = 0,251$ nm eingestellt, was sowohl den {111}-Reflexen des 3C-SiC als auch den $\{00n\}$ - nH/R -SiC-Reflexen nicht-kubischer SiC-Polytypen entspricht. Die vier intensitätsstarken Poldichtemaxima bei $\chi=55^\circ$ können gemäß der Simulation in Abb. 5.16(d) durch (001)-orientiertes 3C-SiC erklärt werden. Ein Vergleich mit der Referenz-Polfigurmessung (s. Abb. 6.1(b)) an Substrat 2 verdeutlicht, dass die Schicht epitaktisch auf dem 3C-SiC(001)-Pseudosubstrat aufgewachsen ist. Dieses Ergebnis steht in Einklang mit den durchgeführten RHEED-Untersuchungen. Des Weiteren können in Abb. 6.8 Poldichtemaxima bei $\chi=16^\circ$ und $\chi=79^\circ$ beobachtet werden. Wie die Simulation in Abb. 5.16(d) klar macht, stimmt die Lage dieser Poldichtemaxima mit denen von 3C-SiC-Zwillingen erster Ordnung überein. Allerdings ist im vorliegenden Fall zu beachten, dass die betreffenden Maxima stark unterschiedliche Intensitäten aufweisen. Der Grund hierfür ist die Existenz von α -SiC-Polytypen, die auf den 3C-SiC-Zwillingen erster Ordnung aufwachsen und durch ihren $\{00n\}$ - nH/R -SiC-

Reflex die Intensität der $\{111\}$ -Zwillingspole bei $\chi=16^\circ$ gegenüber denen bei $\chi=79^\circ$ erhöht. Die c-Achsen der nicht-kubischen Polytypen liegen dabei parallel zu den Flächennormalen der $\{111\}$ -Zwillings Ebenen mit einer Neigung von $15,79^\circ$ gegen die Si(001)-Oberfläche. Anschaulich gesprochen sind α -SiC-Polytypen im Korntyp 2 (s. Abb. 5.10) dadurch gewachsen, dass über größere Bereiche hinweg eine periodische Abweichung von der kubischen Stapelfolge ABC aufgetreten ist. Da dies nicht in allen vier Zwillingsorientierungen gleichhäufig passieren muss, zeigen sich Intensitätsunterschiede in den vier Poldichtemaxima bei $\chi=16^\circ$.

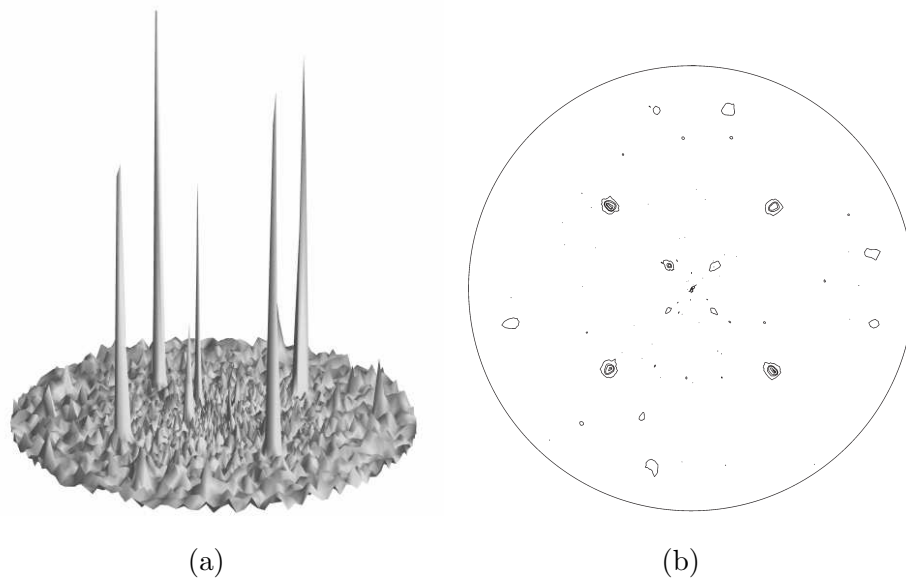


Abb. 6.8: Polfigurmessung für die Substratpräparation durch Ausheizen im Hochvakuum. Die Bragg-Bedingung wurde hier für einen Netzebenenabstand von $d = 0,251$ nm eingestellt, was sowohl den $\{111\}$ -Reflexen des 3C-SiC als auch den $\{00n\}$ - nH/R -SiC-Reflexen nicht-kubischer SiC-Polytypen entspricht. Poldichtemaxima befinden sich bei $\chi=16^\circ$, 55° , 79° . (a) 3D-Darstellung (b) 2D-Darstellung

In Abb. 6.9 ist die Polfigurmessung für die Substratpräparation im Wasserstoffplasma dargestellt. Auch in diesem Fall wurde die Bragg-Bedingung für einen Netzebenenabstand von $d = 0,251$ nm eingestellt. Im Vergleich zu Abb. 6.8 ist hier ein wesentlich besseres Schichtwachstum zu erkennen. Bei den vier dominanten Poldichtemaxima bei $\chi=55^\circ$ handelt es sich um die $\{111\}$ -Pole des 3C-SiC, das (001)-orientiert vorliegt. Die Referenz-Polfigurmessung an Substrat 2 in Abb. 6.1(b) lässt folgern, dass die 3C-SiC-Schicht epitaktisch auf dem 3C-SiC(001)-Pseudosubstrat aufgewachsen ist. Schwache Poldichtemaxima bei $\chi=16^\circ$ und $\chi=79^\circ$ deuten auf einen geringen Anteil an 3C-SiC-Zwillingen erster Ordnung hin. Entsprechend können in

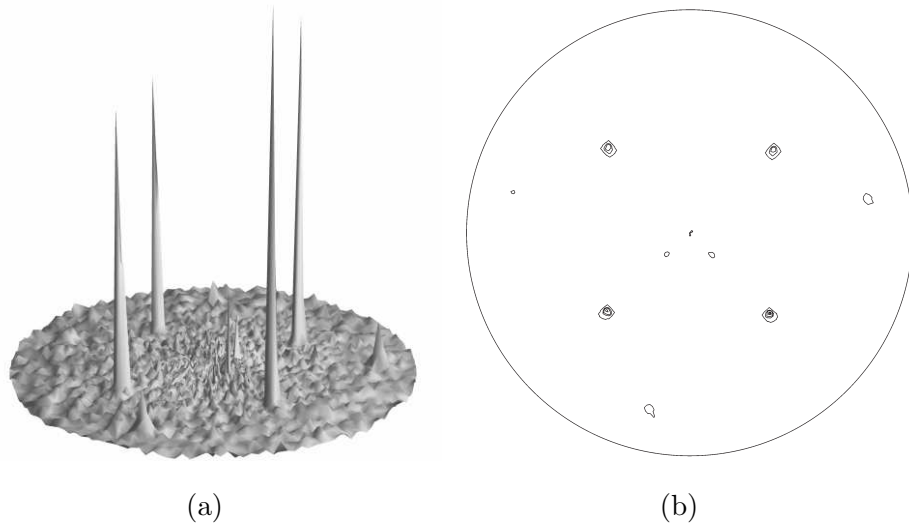


Abb. 6.9: Polfigurmessung für die Substratpräparation im Wasserstoffplasma. Die Bragg-Bedingung wurde hier für einen Netzebenenabstand von $d = 0,251$ nm eingestellt, was sowohl den $\{111\}$ -Reflexen des 3C-SiC als auch den $\{00n\}$ - n H/R-SiC-Reflexen nicht-kubischer SiC-Polytypen entspricht. Poldichtemaxima befinden sich bei $\chi = 16^\circ, 55^\circ, 79^\circ$. (a) 3D-Darstellung (b) 2D-Darstellung

der 2D-Darstellung auch nicht alle theoretisch vorausgesagten Zwillingspole beobachtet werden. Reflexe nicht-kubischer Polytypen treten in dieser Polfigur nicht auf.

In Abb. 6.10(a) sind die θ - 2θ -Beugungsdiagramme der 3C-SiC-Schichten zusammengestellt, die auf den beiden unterschiedlich präparierten Substraten gewachsen wurden. Als Referenz wurde die Messung an Substrat 2 vor der Schichtabscheidung ebenfalls hinzugefügt. In allen drei Spektren ist in Übereinstimmung mit den Polfigurmessungen als Schichtreflex lediglich der (002)-Reflex des 3C-SiC zu beobachten. Trotz der Existenz von α -SiC-Polytypen in der 3C-SiC-Schicht, die auf dem ausgeheizten Substrat abgeschieden wurde, zeigt das zugehörige θ - 2θ -Beugungsdiagramm keine α -SiC-Reflexe. Der Grund hierfür liegt im Aufwachsen auf den Zwillingen erster Ordnung. Dies führt dazu, dass keine α -SiC-Netzebenen parallel zur (001)-Ebene des 3C-SiC liegen und die Beugungsbedingung in der vorliegenden Messung erfüllen können.

Abb. 6.10(b) zeigt vergleichend die Rocking-Kurven des (002)-3C-SiC-Reflexes. Die Halbwertsbreiten machen deutlich, dass sich im Wachstum auf dem ausgeheizten Substrat die mittlere Verkippung der 3C-SiC-Kristallite um die Probenormale nur

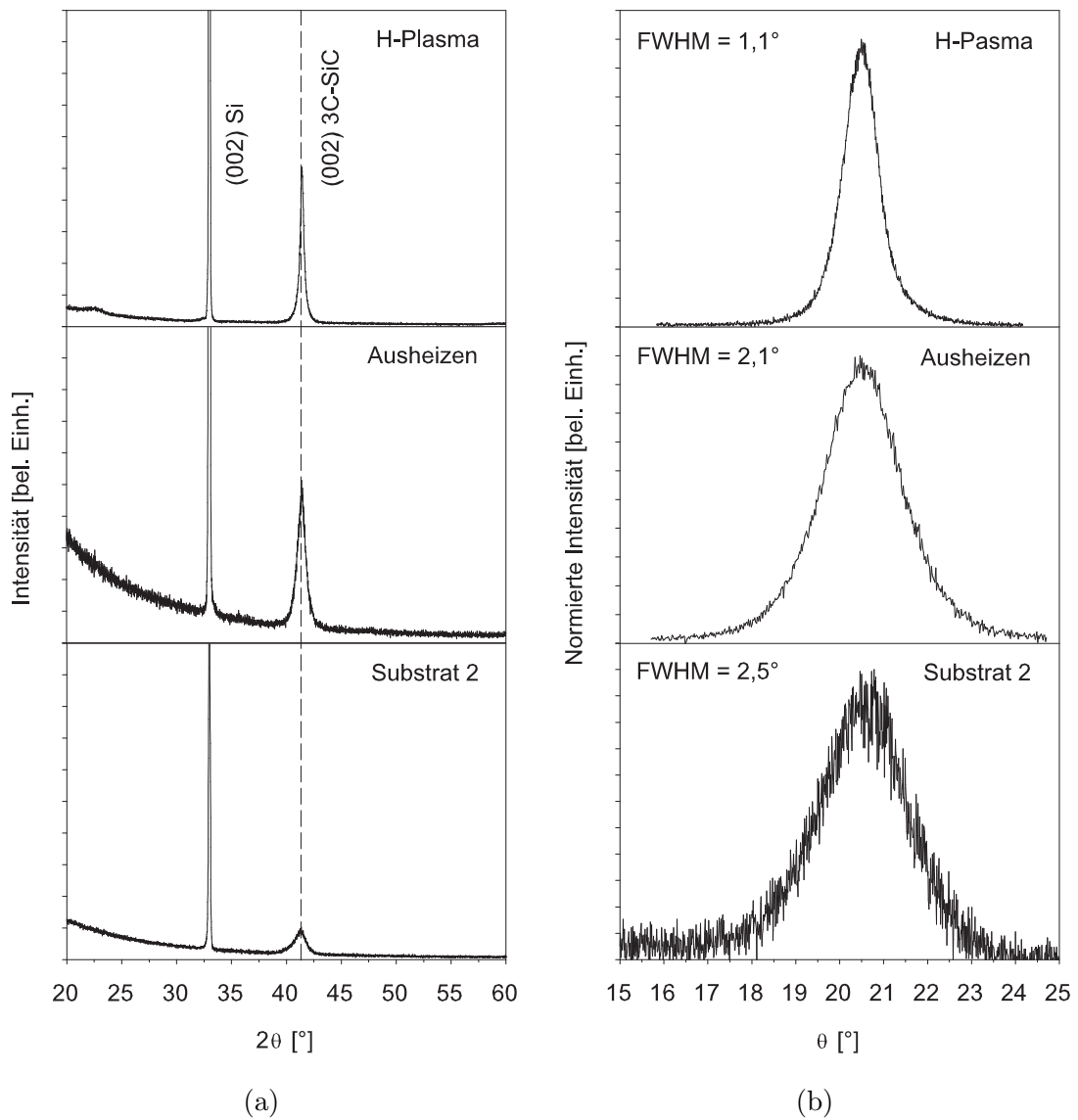


Abb. 6.10: (a) θ - 2θ -Röntgen-Beugungsdiagramme für die Schichtabscheidung auf dem ausgeheizten bzw. plasmagereinigten 3C-SiC-Substrat. Als Referenz ist die Messung an Substrat 2 vor der Schichtabscheidung ebenfalls dargestellt. (b) Rocking-Kurve des (002)-Reflexes von 3C-SiC

geringfügig verbessert hat. Durch die Vorbehandlung des Substrats im Wasserstoffplasma hingegen konnte im nachfolgenden Schichtwachstum eine deutliche polare Texturverbesserung erreicht werden.

Die Auswirkungen der Substratpräparation auf die Feinstruktur der 3C-SiC-Schichten wurde mittels Transmissionselektronenmikroskopie im Querschnitt untersucht.

In Abb. 6.11(a) ist die Hellfeldaufnahme der Probe dargestellt, bei der die Schichtabscheidung auf dem ausgeheizten Substrat stattfand. Deutlich zu erkennen ist die Grenzfläche zwischen dem 3C-SiC des Pseudosubstrats und der gewachsenen Schicht. Im Substrat liegt das ionenstrahlsynthetisierte 3C-SiC als durchgehende epitaktische Schicht vor, wobei Kontrastvariationen auf eine hohe Dichte an Gitterfehlern hinweisen. Die darauf abgeschiedene 3C-SiC-Schicht setzt sich aus kolumnar gewachsenen SiC-Kristalliten zusammen, die sich von der Grenzfläche zum Pseudosubstrat bis zur Oberfläche erstrecken. Die Breite der Körner liegt dabei im Bereich von 30 nm bis 80 nm und bleibt über die Schichtdicke hinweg relativ konstant. Die Feinbereichsbeugung in Abb. 6.11(e) entlang $[110]_{3C-SiC}$ verdeutlicht, dass homoepitaktisches 3C-SiC-Wachstum stattgefunden hat, da lediglich eine Orientierungsbeziehung zwischen 3C-SiC und Si vorherrscht. Allerdings können auch Beugungsreflexe beobachtet werden, die auf die Existenz von 3C-SiC-Zwillingen erster Ordnung zurückzuführen sind. Einer dieser Zwillingsreflexe ist beispielhaft markiert. Gemäß den RHEED-Untersuchungen erfolgte die Bildung von Zwillingsorientierungen erst während des Depositionsprozesses, so dass die Zwillingsreflexe in Abb. 6.11(e) der homoepitaktisch gewachsenen 3C-SiC-Schicht zuzuordnen sind.

Die Mehrzahl der SiC-Körner in der gewachsenen Schicht weist streifenförmige Kontraste auf, wobei innerhalb eines Kornes der Neigungswinkel der Streifen konstant bleibt. In Abb. 6.11(a) sind beispielhaft drei derartige Körner markiert und mit der Bezeichnung Korn 1 bis Korn 3 versehen. Abhängig vom spitzen Winkel, der von den Streifen mit der 3C-SiC(001)-Oberfläche des Substrats eingeschlossen wird, können prinzipiell zwei verschiedene Typen von Körnern identifiziert werden. Diese sind identisch mit den Korntypen aus Abschnitt 5.2 zum heteroepitaktischen 3C-SiC-Wachstum und werden im nachfolgenden entsprechend Abb. 5.10 als Korntyp 1 und Korntyp 2 bezeichnet.

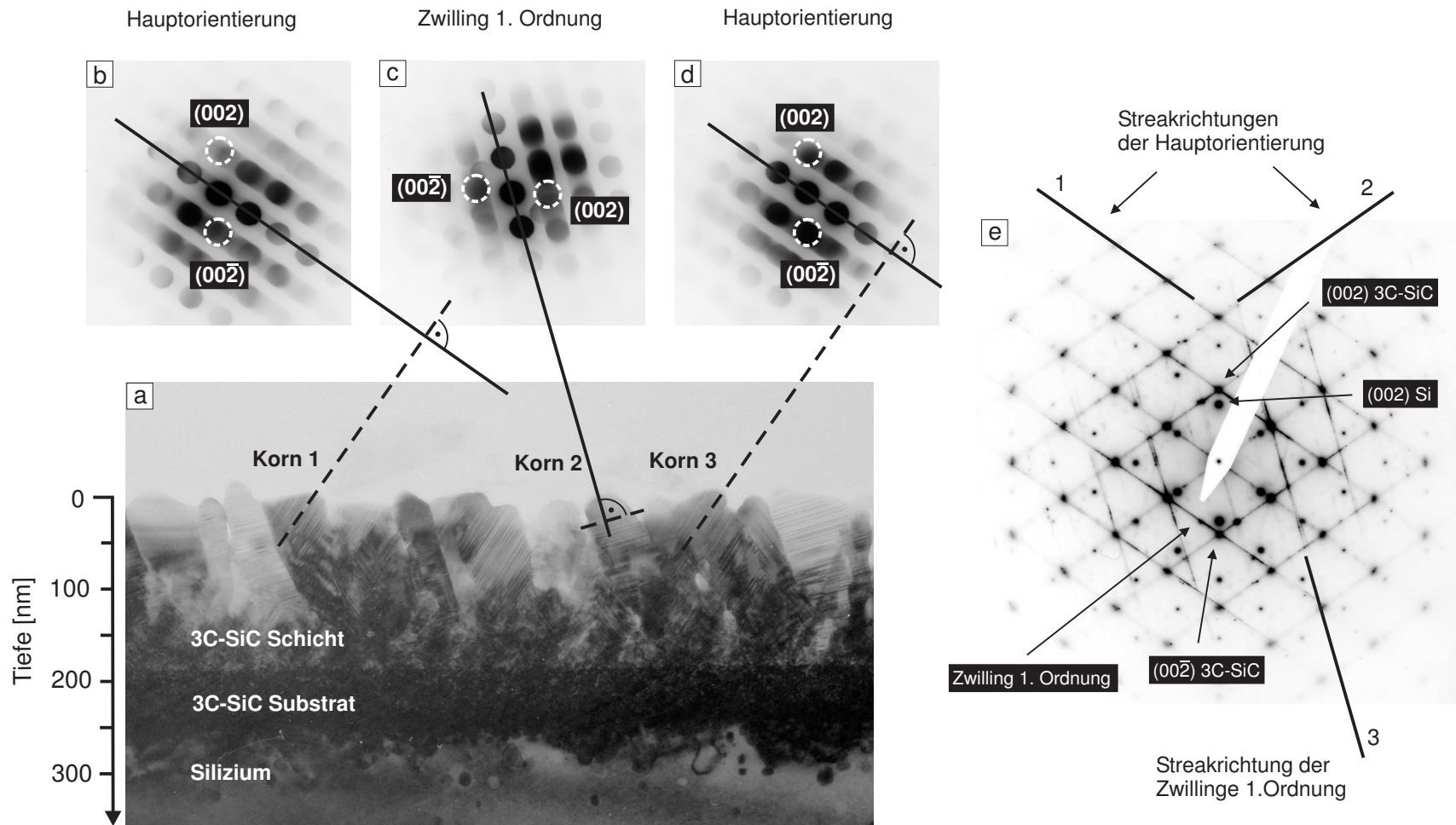


Abb. 6.11: TEM-Aufnahmen für die Schichtabscheidung auf dem ausgeheizten 3C-SiC-Substrat. Für die Darstellung wurde die magnetische Bildrotation des TEMs korrigiert. (a) Hellfeldaufnahme im Schnitt durch die (110) 3C-SiC-Ebene (b) Beugungsaufnahme an Korn 1 entlang $[110]$ 3C-SiC (c) Beugungsaufnahme an Korn 2 entlang $[110]$ 3C-SiC (d) Beugungsaufnahme an Korn 3 entlang $[110]$ 3C-SiC (e) Feinbereichsbeugung entlang $[110]$ 3C-SiC für den Probenbereich der Hellfeldaufnahme

Abb. 6.12(a) zeigt die HRTEM-Aufnahme eines SiC-Korns mit Streifen, das auf dem ausgeheizten Substrat aufgewachsen ist. Es ist eine hohe Dichte an Stapelfehlern zu erkennen, die auf den 3C-SiC- $\{111\}$ -Ebenen liegen. Daraus kann gefolgert werden, dass das betreffende Korn durch Aufstapeln dieser Netzebenen gewachsen ist. Abweichungen von der Stapelfolge ABC für das 3C-SiC äußern sich in Form einer Kontrastvariation in den Hellfeldaufnahmen, wodurch hellere und dunklere Streifen parallel zu den $\{111\}$ -Ebenen beobachtet werden können, die senkrecht zur Stapelrichtung liegen. Gemäß den Ausführungen in Abschnitt 5.2 können Abweichungen von der kubischen Stapelfolge nicht nur durch Stapelfehler wie in Abb. 6.12(a) verursacht werden, sondern auch durch Zwillingslamellen und den lokal begrenzten Einbau von α -SiC-Polytypen. In allen drei Fällen sind streifenförmige Kontrastvariationen in den TEM-Hellfeldaufnahmen die Folge.

Um die Orientierung charakteristischer SiC-Körner in Abb. 6.11(a) zu überprüfen, wurden Beugungsaufnahmen entlang $[110]_{3C-SiC}$ an einzelnen Kristalliten aufgenommen. Hierfür wurde im Vergleich zur Feinbereichsbeugung in Abb. 6.11(e) eine kleinere Kondensor-Apertur verwendet.

In Abb. 6.11(b) ist die Beugungsaufnahme an Korn 1 dargestellt. Die Lage der Reflexe lässt folgern, dass es dem Korntyp 1 angehört und das 3C-SiC in der epitaktischen Grundorientierung vorliegt. Die streifenförmigen Kontraste im Hellfeld schließen einen theoretischen Winkel von $54,74^\circ$ mit der 3C-SiC(001)-Oberfläche des Pseudosubstrats ein. Korrigiert man die magnetische Bildrotation des TEMs, d.h. die instrumentell bedingte Rotation zwischen Hellfeld- und Beugungsaufnahme, so zeigt sich, wie in Abb. 6.11 dargestellt, dass die Streaks im Beugungsbild senkrecht auf den Kornstreifen im Hellfeld stehen. Zu den möglichen Ursachen der Streaks zählt für Korntyp 1 eine hohe Dichte von Stapelfehlern auf den $\{111\}$ -Ebenen mit $54,74^\circ$ Neigung bzw. plättchenförmiges Wachstum in Form von Zwillingslamellen erster Ordnung. Letzteres kann allerdings für Korn 1 ausgeschlossen werden, da das Beugungsbild keine entsprechenden Zwillingsreflexe aufweist.

Abb. 6.11(c) zeigt das Beugungsbild an Korn 2. Ein Vergleich mit den Simulationen in Abb. 5.15 lässt schlussfolgern, dass dieses Korn dem Typ 2 zuzuordnen ist und sich das 3C-SiC in einer Zwillingsorientierung erster Ordnung befindet. Die streifenförmigen Kontraste bilden einen theoretischen Winkel von $15,79^\circ$ mit der 3C-SiC(001)-Oberfläche des Pseudosubstrats. Auch in diesem Fall kann nach Korrektur der magnetischen Bildrotation beobachtet werden, dass die Streaks im Beugungsbild und die Kornstreifen im Hellfeld orthogonal zueinander orientiert sind. Das Auftreten der Streaks lässt sich für Korntyp 2 durch eine hohe Dichte von Stapelfehlern auf

$\{111\}$ -Ebenen mit einer Neigung von $15,79^\circ$ bzw. durch plättchenförmiges Wachstum in Form von Zwillingsslamellen zweiter Ordnung begründen. Da im Beugungsbild jedoch keine entsprechenden Zwillingreflexe vorhanden sind, scheidet in diesem Fall die letztgenannte Erklärungsmöglichkeit aus.

Aus den vorangegangenen XRD-Polfigurmessungen kann allerdings gefolgert werden, dass in der betreffenden SiC-Schicht auch Kristallite vom Korntyp 2 vorliegen, in denen nicht-kubische Polytypen auf den 3C-SiC-Zwillingen erster Ordnung aufgewachsen sind. Im lokal begrenzten Bereich der Hellfeldaufnahme in Abb. 6.11(a) konnten derartige Kristallite jedoch nicht nachgewiesen werden.

Die Beugungsaufnahme an Korn 3 ist in Abb. 6.11(d) zu sehen. Hier gelten die gleichen Aussagen, die auch für Korn 1 getroffen wurden.

Da die Feinbereichsbeugung in Abb. 6.11(e) die Beugung an einem größeren Probenbereich, d.h. an mehreren Kristalliten, repräsentiert, sind die Streakrichtungen von Korntyp 1 und 2 gleichzeitig zu beobachten. Die Simulationen in Abb. 5.15 gestatten es, die charakteristischen Streakrichtungen mit den beiden Korntypen im 3C-SiC-Wachstum zu korrelieren. Die Streakrichtung 1 und 2 ist mit Korntyp 1 verknüpft, die Streakrichtung 3 ist dem Korntyp 2 zuzuordnen. Gemäß der Simulation in Abb. 5.15(c) kann das aufgenommene Beugungsbild eine vierte Streakrichtung enthalten, wobei Korntyp 2 in der dort abgebildeten Zwillingorientierung erster Ordnung vorliegt. Da aber entsprechend orientierte Kristallite im begrenzten Probenbereich für die Feinbereichsbeugung nicht vorhanden waren, tritt die entsprechende Streakrichtung in Abb. 6.11(e) nicht auf.

Es sei erwähnt, dass für die Darstellung der Feinbereichsbeugung in Abb. 6.11(e) ebenfalls eine Korrektur der magnetischen Bildrotation durchgeführt wurde. Es zeigen sich deshalb abhängig vom Korntyp parallele Streakverläufe zu denen von Abb. 6.11(b) bis 6.11(d).

Die Grenzfläche zwischen dem ausgeheizten 3C-SiC-Substrat und der homoepitaktisch gewachsenen Schicht wurde mit Hilfe von HRTEM näher untersucht. Dabei wurde eine hohe Dichte an pyramidenförmigen 3C-SiC-Strukturen festgestellt, die als Ausgangspunkt von Defekten im nachfolgenden Schichtwachstum wirken.

In Abb. 6.12(b) ist eine dieser Pyramiden im Schnitt durch die (110) 3C-SiC-Ebene beispielhaft abgebildet. Ihre laterale Ausdehnung beträgt an der breitesten Stelle in etwa 10 nm. Der Verlauf der Grenzfläche zwischen Substrat und Schicht lässt sich anhand der geringeren Defektdichte im ionenstrahlsynthetisierten 3C-SiC relativ genau lokalisieren. Das Durchlaufen der $\{111\}$ -Netzebenen vom 3C-SiC-Substrat in die

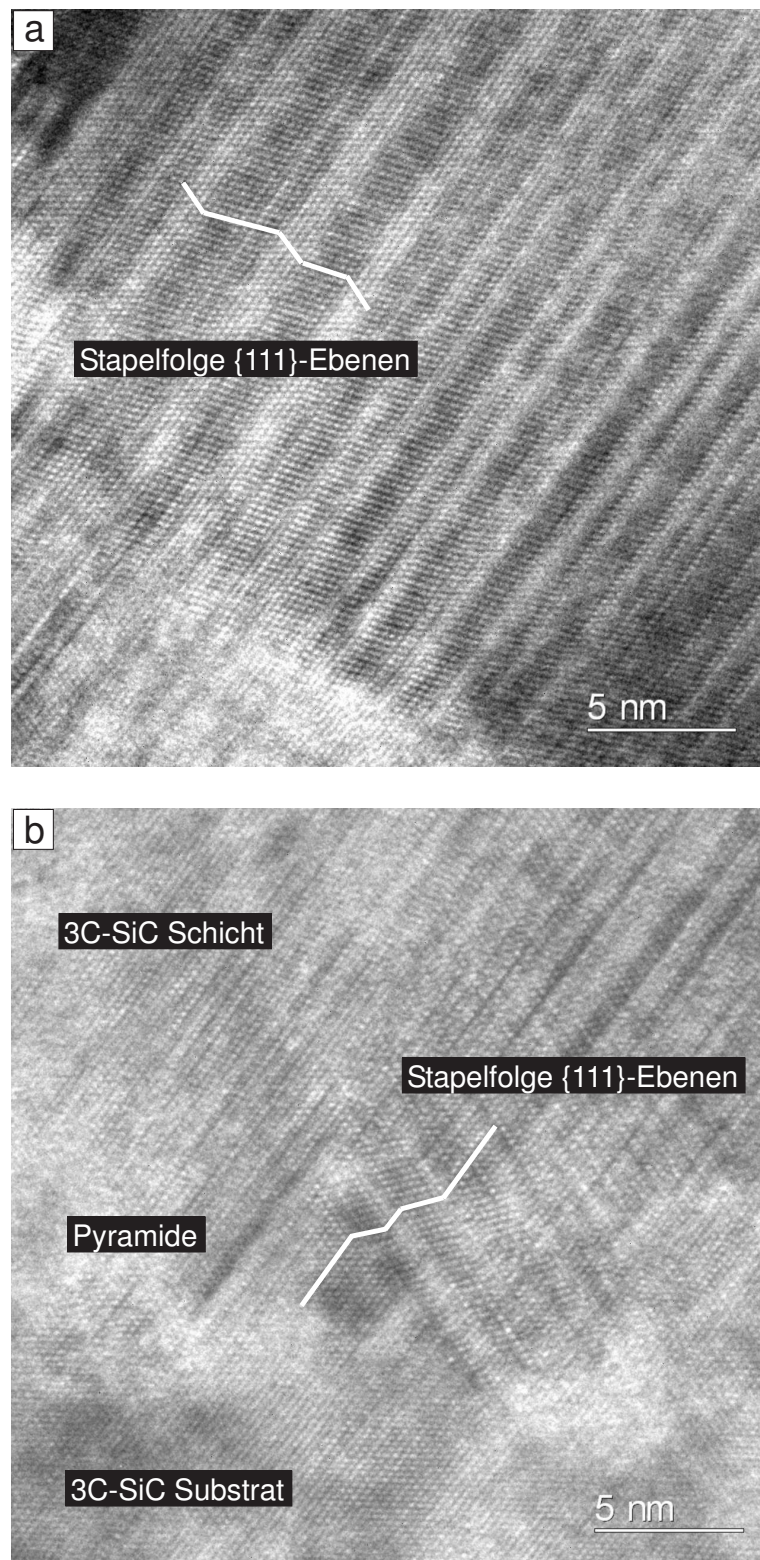


Abb. 6.12: HRTEM-Aufnahmen zur Schichtabscheidung auf dem ausgeheizten 3C-SiC-Substrat. Gezeigt ist jeweils der Schnitt durch die (110)3C-SiC-Ebene. (a) Stapelfolge der {111}-Ebenen in einem Korn der gewachsenen Schicht. (b) Übergangsbereich zwischen Substrat und Schicht. Eine an der Grenzfläche befindliche 3C-SiC-Pyramide wirkt als Ausgangspunkt von Defekten in der gewachsenen Schicht.

an der Grenzfläche befindliche Pyramide hinein lässt den Schluss zu, dass das 3C-SiC in beiden Fällen die gleiche Orientierung aufweist. Seitlich wird die Pyramide durch $\{111\}$ -3C-SiC-Netzebenen begrenzt. Die Lage der Stapelfehler in der Schicht weist darauf hin, dass während des Depositionsprozesses $\{111\}$ -Netzebenen auf die Seitenflächen der Pyramide gestapelt wurden. Die dabei entstandenen Defekte wurden in die wachsende Schicht hinein fortgesetzt und haben zu Bereichen mit hoher Defektdichte im 3C-SiC-Kristallgitter geführt.

Es liegt die Vermutung nahe, dass die Pyramiden während des Ausheizens des Pseudosubstrats bei 950°C entstanden sind. Silizium- und Kohlenstoffatome wurden der amorphen Deckschicht entnommen und haben 3C-SiC-Inseln auf der Substratoberfläche gebildet. Die RHEED-Untersuchungen unterstützen diese These, da nach dem Ausheizen des Substrats deutliche Transmissions-Beugungsreflexe von epitaktisch orientiertem 3C-SiC zu beobachten waren (s. Abb. 6.5(b)). Die Pyramidenform der Inseln resultiert aus der Begrenzung durch $\{111\}$ -Ebenen, welche auf die Minimierung der Oberflächenenergie zurückzuführen ist.

Es darf angenommen werden, dass das in Abb. 6.11(a) verdeutlichte kolumnare Wachstum der 3C-SiC-Schicht eng mit der Problematik der Pyramidenbildung verknüpft ist. Vermutlich beginnt das Wachstum der Kristallite bevorzugt an den 3C-SiC-Inseln. Eine hohe Inseldichte führt folglich zu einer frühzeitigen Begrenzung des lateralen Kornwachstums und es ergeben sich schmale säulenförmige Kristallite.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass das homoepitaktische Wachstum auf dem ausgeheizten 3C-SiC(001)-Pseudosubstrat im wesentlichen dem heteroepitaktischen 3C-SiC-Wachstum auf Si(001) in Abschnitt 5.2 entspricht. Hinsichtlich der erreichten Schichtqualität sind keine signifikanten Unterschiede zu beobachten.

Im Falle der Schichtabscheidung auf dem plasmagereinigten 3C-SiC(001)-Pseudosubstrat zeigen die TEM-Untersuchungen ein völlig anderes Bild bezüglich der Feinstruktur.

Die Hellfeldaufnahme in Abb. 6.13(a) verdeutlicht, dass über große laterale Bereiche hinweg eine zusammenhängende 3C-SiC-Schicht ohne erkennbare Korngrenzen gewachsen wurde. Mit zunehmender Schichtdicke kann darüber hinaus eine Abnahme der Defektdichte festgestellt werden.

Die Dunkelfeldaufnahme in Abb. 6.13(b) wurde mit einem $\{111\}$ -3C-SiC-Reflex aufgenommen. Der korrespondierende Probenbereich zu Abb. 6.13(a) ist mit Markern gekennzeichnet. Es können ausgedehnte Bereiche mit starker Anregung nahe der Schichtoberfläche beobachtet werden. An den betreffenden Stellen liegt das 3C-SiC

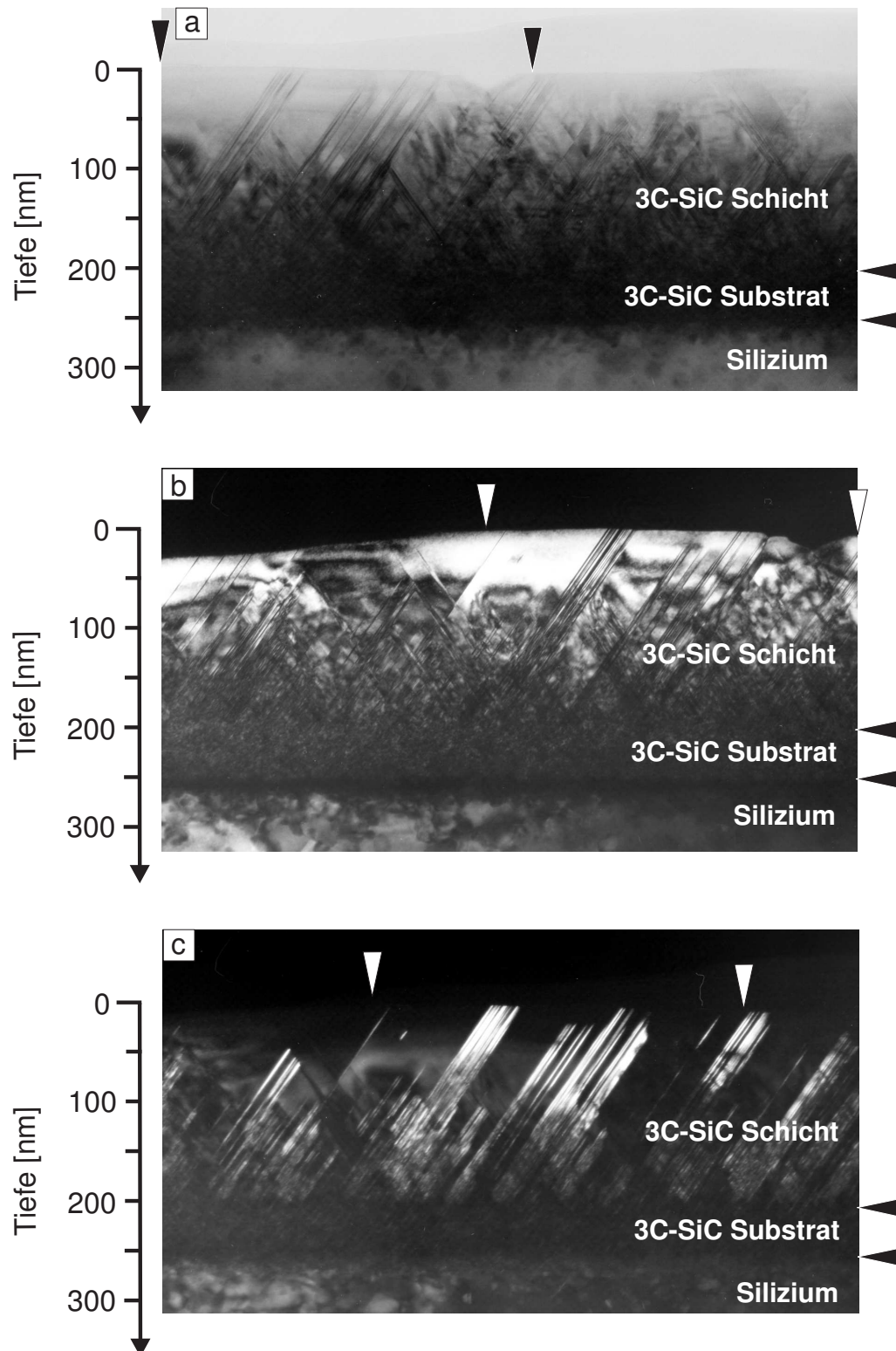


Abb. 6.13: TEM-Aufnahmen für die Schichtabscheidung auf dem plasmabehandelten 3C-SiC-Substrat. Gezeigt ist der Schnitt durch die (110)3C-SiC-Ebene. Marker zeigen korrespondierende Probenbereiche. (a) Hellfeld (b) Dunkelfeld mit (111)-3C-SiC-Reflex (c) Dunkelfeld mit 3C-SiC-Zwillingsreflex erster Ordnung

in hoher kristalliner Qualität mit geringer Defektdichte vor.

Die Feinbereichsbeugung entlang $[110]3\text{C-SiC}$ ist in Abb. 6.14 dargestellt. Sie verdeutlicht, dass homoepitaktisches Wachstum stattgefunden hat, da lediglich eine Orientierungsbeziehung zwischen 3C-SiC und Si festzustellen ist. Allerdings können auch schwache Beugungsreflexe beobachtet werden, die mit Zwillingen erster Ordnung verknüpft sind. Einer dieser Zwillingsreflexe ist beispielhaft markiert. Die in-situ RHEED-Untersuchungen an dieser Probe haben gezeigt, dass die Bildung von Zwillingsorientierungen erst während des Depositionsprozesses stattfand. Zwillingsreflexe in Abb. 6.14 sind folglich der homoepitaktisch gewachsenen 3C-SiC -Schicht zuzuordnen.

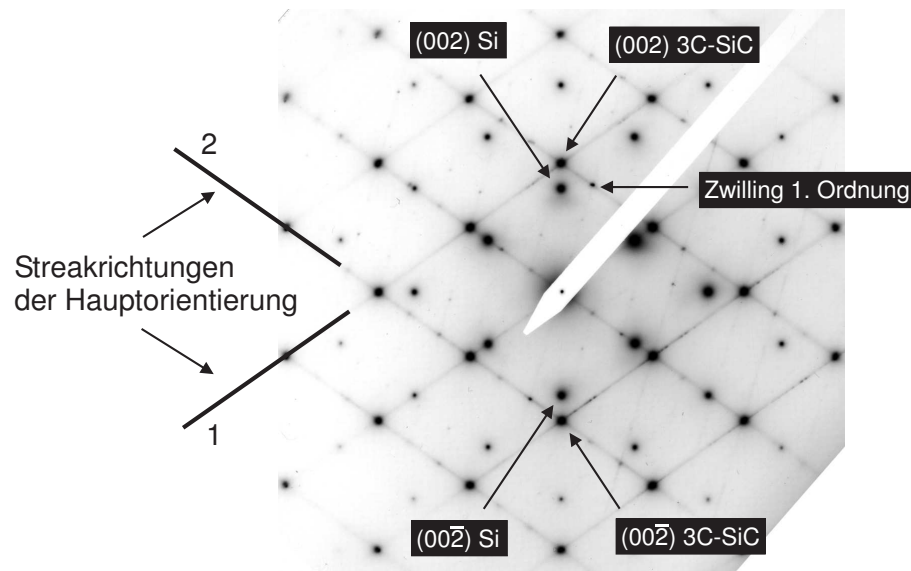


Abb. 6.14: TEM-Feinbereichsbeugung entlang $[110]3\text{C-SiC}$ für die Schichtabscheidung auf dem plasmabehandelten 3C-SiC -Substrat. Es wird deutlich, dass homoepitaktisches 3C-SiC -Wachstum stattgefunden hat, da lediglich eine Orientierungsbeziehung zwischen 3C-SiC und Si vorherrscht. Die Streakrichtungen 1 und 2 sind dem Korntyp 1 zuzuordnen und entstehen durch Stapelfehler auf $\{111\}$ -Ebenen mit einer Neigung von $54,74^\circ$ gegen die $3\text{C-SiC}(001)$ -Substratoberfläche bzw. durch plättchenförmiges Wachstum in Form von Zwillingen erster Ordnung.

Charakteristisch für die Hellfeldaufnahme in Abb. 6.13(a) ist das Auftreten von vereinzelt streifenförmigen Kontrastvariationen. Besonders deutlich sind sie im defektärmeren Bereich nahe der Schichtoberfläche zu erkennen. Aufgrund des spitzen Winkels von etwa 55° , den diese Streifen mit der $3\text{C-SiC}(001)$ -Oberfläche des Pseudosubstrats einschließen, können sie mit dem Korntyp 1 in Abb. 5.10 korreliert werden. Gemäß den Ausführungen in Abschnitt 5.2 liegt das 3C-SiC in diesem Fall in der epitaktischen Grundorientierung vor und die Streifen werden durch Stapelfehler

auf $\{111\}$ -Ebenen mit $54,74^\circ$ -Neigung bzw. durch Zwillingslamellen erster Ordnung verursacht.

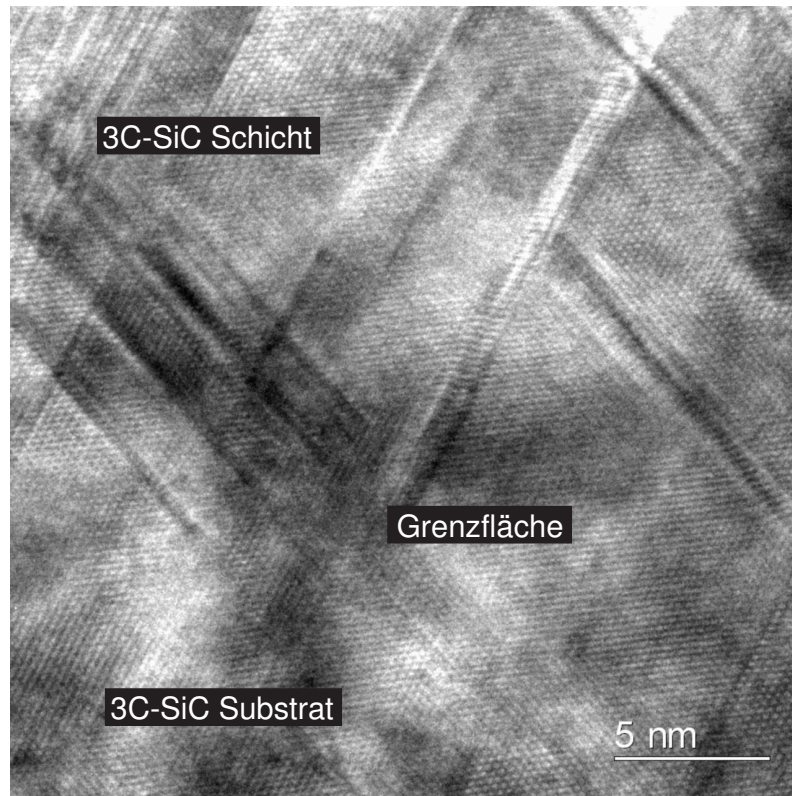


Abb. 6.15: HRTEM-Aufnahme zur Schichtabscheidung auf dem plasmabehandelten 3C-SiC-Substrat. Gezeigt ist der Schnitt durch die (110)3C-SiC-Ebene. Das sehr gute homoepitaktische Wachstum wird deutlich. Der Verlauf der Grenzfläche zwischen Substrat und Schicht kann lediglich durch die geringere Defektdichte im ionenstrahlsynthetisierten 3C-SiC lokalisiert werden.

Für die Dunkelfeldaufnahme in Abb. 6.13(c) wurde zur Abbildung ein $\{111\}$ -3C-SiC-Zwillingsreflex erster Ordnung verwendet. Der korrespondierende Probenbereich zu Abb. 6.13(a) und Abb. 6.13(b) ist mit Markern gekennzeichnet. Die angeregten streifenförmigen Bereiche können mit Zwillingslamellen erster Ordnung identifiziert werden, die in die Grundorientierung eingebettet sind. Ein Vergleich mit Abb. 6.13(a) bestätigt, dass die betreffenden Probenbereiche mit streifenförmigen Kontrastvariationen im Hellfeldbild korreliert sind.

Es ist zu beobachten, dass die Zwillingslamellen in der Regel an der Grenzfläche zum 3C-SiC-Substrat beginnen und sich dann in die gewachsene Schicht hinein fortsetzen. Die Mehrzahl erstreckt sich bis zur Schichtoberfläche. Dies steht im Einklang mit den RHEED-Untersuchungen, die gezeigt haben, dass die Bildung von Zwillingen erster Ordnung bereits zu Beginn des Depositionsprozesses einsetzt und sich

über die gesamte Schichtabscheidung hinweg fortsetzt.

Da das 3C-SiC-Substrat keine Zwillingsorientierungen enthält, weist es in Abb. 6.13(c) keine angeregten Bereiche auf. Die Grenzfläche zwischen Substrat und Schicht ist dadurch besonders deutlich erkennbar.

Die Feinbereichsbeugung in Abb. 6.14 weist Streaks in zwei charakteristischen Richtungen auf. Mit Hilfe der Simulationen in Abb. 5.15 wird klar, dass beide der epitaktischen Hauptorientierung des 3C-SiC zuzuordnen sind. Sie entstehen durch Stapelfehler auf {111}-Ebenen mit einer Neigung von $54,74^\circ$ gegen die 3C-SiC(001)-Substratoberfläche bzw. durch plättchenförmiges Wachstum in Form von Zwillingen erster Ordnung. Letzteres konnte anhand der Dunkelfeldaufnahme in Abb. 6.13(c) veranschaulicht werden.

Ein wichtiger Aspekt im homoepitaktischen Wachstum auf dem plasmabehandelten Substrat ist die Tatsache, dass im gesamten mittels TEM untersuchten Probenbereich kein Hinweis auf Körner des Typs 2 gefunden werden konnte. Auch die Beugungsaufnahme in Abb. 6.14 enthält deshalb keine Streaks, die mit diesem Korntyp verknüpft sind. Allerdings konnten in den RHEED-Untersuchungen schwache Streaks mit einer Neigung von $15,79^\circ$ gegen die Senkrechte beobachtet werden (s. Abb. 6.5(g)). Es kann daraus geschlossen werden, dass die Schicht neben der epitaktischen Hauptorientierung auch einen kleinen Anteil an Kristalliten des Typs 2 beinhaltet. Im Vergleich zur Schichtabscheidung auf dem ausgeheizten Substrat konnte jedoch die Problematik des Schichtwachstums in zwei verschiedenen Korntypen mit unterschiedlichen 3C-SiC-Orientierungen deutlich verringert werden. Die Folge ist eine signifikante Verbesserung der Schichtqualität.

Mit Hilfe von Hochauflösungsaufnahmen im Schnitt durch die (110)3C-SiC-Ebene wurde die Grenzfläche zwischen dem plasmabehandelten 3C-SiC-Substrat und der homoepitaktisch gewachsenen Schicht näher untersucht. Abb. 6.15 verdeutlicht das sehr gute epitaktische Wachstum. Der Verlauf der Grenzfläche kann lediglich durch die geringere Defektdichte im Ionenstrahlsynthetisierten 3C-SiC lokalisiert werden. Es kann daraus geschlossen werden, dass die amorphe Deckschicht, die ursprünglich die Substratoberfläche bedeckte, im Wasserstoffplasma vollständig entfernt wurde. Im Gegensatz zum ausgeheizten Substrat haben sich keine 3C-SiC-Pyramiden an der Grenzfläche zwischen Substrat und Schicht gebildet, wodurch ein kolumnares 3C-SiC-Wachstum vermieden wurde. Es ist anzunehmen, dass die Plasmabehandlung zu einer relativ glatten Oberfläche geführt hat, so dass in der homoepitaktischen

3C-SiC-Schicht nahe der Grenzfläche zum Substrat eine relativ geringe Defektdichte vorherrscht.

6.3 Einfluss des Depositionsratenverhältnisses

Anhand von in-situ RHEED-Untersuchungen konnte festgestellt werden, dass neben der Oberflächenbeschaffenheit der 3C-SiC(001)-Pseudosubstrate auch das Depositionsratenverhältnis von C_{60} und Si entscheidenden Einfluss auf das homoepitaktische Schichtwachstum nimmt. Abhängig davon, ob die Schichtabscheidung unter kohlenstoff- oder siliziumreichen Bedingungen erfolgt, weisen die Beugungsbilder charakteristische Unterschiede auf.

Im nachfolgenden wird das am Beispiel zweier Proben verdeutlicht, die auf Substrat 1 gewachsen wurden. In beiden Fällen erfolgte die Substratpräparation durch Reinigung im Wasserstoffplasma. Die betreffenden Parameter sind in Tab. 7.2 im Anhang zusammengestellt. Für die Synthese der 3C-SiC-Schichten wurde C_{60} und Si für 210 min simultan aufgedampft. Der C_{60} -Fluss betrug dabei jeweils $8,9 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, die Substrattemperatur 950°C . Unterschiedliche Si:C-Verhältnisse in der Gasphase wurden durch entsprechende Wahl der Si-Depositionsrate realisiert.

Für das Wachstum unter kohlenstoffreichen Bedingungen wurde ein Si:C-Verhältnis von 0,7 eingestellt. Abb. 6.16(a) bis (d) zeigt die RHEED-Beugungsbilder im [110]-Azimut für die ersten 10 min der Deposition. Unmittelbar vor der Schichtabscheidung weisen senkrechte Streaks auf eine relativ glatte unrekonstruierte 3C-SiC(001)-Oberfläche hin. Während der Deposition verlieren die Streaks an Intensität und sind nach 5 min völlig verschwunden. Rauigkeiten des Substrats äußern sich in Abb. 6.16(a) in Form von Transmissions-Beugungsreflexen, die den Streaks überlagert sind. Während des epitaktischen 3C-SiC-Wachstums treten diese Reflexe immer deutlicher hervor, was auf eine Aufrauung der Oberfläche schließen lässt.

Bezüglich der Schichtabscheidung unter siliziumreichen Bedingungen sind einige Besonderheiten in der Prozessführung zu beachten. Die Depositionsbedingungen sind so zu wählen, dass das epitaktische 3C-SiC-Wachstum durch das Überangebot an Silizium nicht gestört wird. Experimente im Rahmen dieser Arbeit haben gezeigt, dass bereits ein geringer Si-Überschuss zur Bildung von epitaktisch orientierten Si-Inseln auf der 3C-SiC-Oberfläche führt. Dies ist beispielsweise in der heteroepitaktischen Schichtabscheidung in Abschnitt 5.2 zu beobachten. Das RHEED-Beugungsbild weist in diesem Fall entsprechende Transmissions-Beugungsreflexe des Siliziums auf.

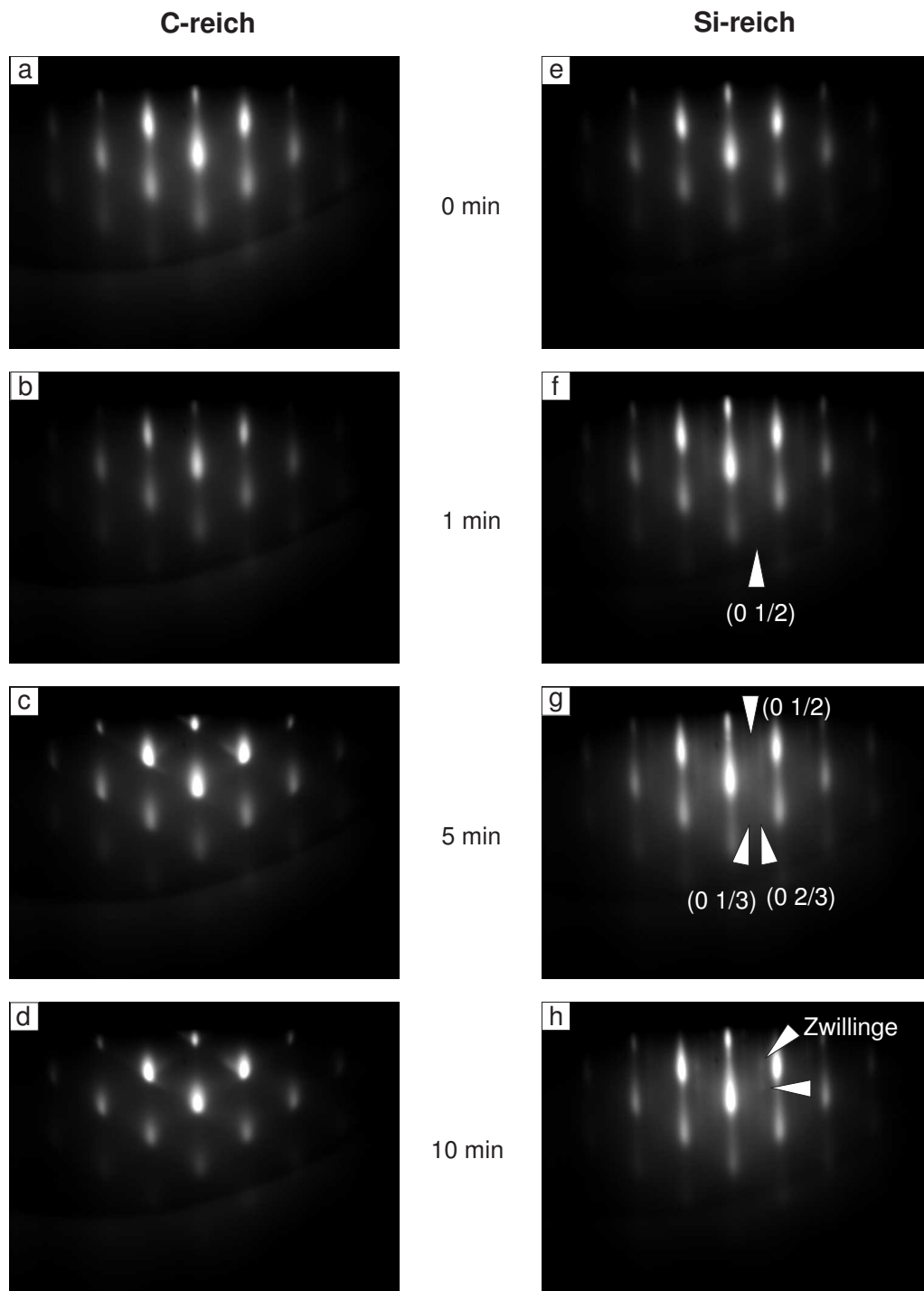


Abb. 6.16: RHEED-Beugungsbilder im $[110]$ -Azimut während des homoepitaktischen 3C-SiC-Schichtwachstums auf Substrat 1. Gegenüberstellung des Wachstums unter kohlenstoffreichen (links) und siliziumreichen (rechts) Bedingungen. Zur Realisierung kohlenstoffreicher Abscheidebedingungen wurde ein Si:C-Verhältnis von 0,7 bezüglich der Depositionsraten von C_{60} und Si eingestellt.

Wird die Si-Depositionsrates über dieses Stadium hinaus weiter erhöht, so führt dies zu einer immer stärkeren Störung des 3C-SiC-Wachstums, so dass es schließlich zum Verlust der Epitaxie kommt.

Um ein stabiles Wachstum unter siliziumreichen Bedingungen zu erreichen, sollte deshalb das Si:C-Verhältnis in der Gasphase nur geringfügig größer als eins gewählt werden. Im Idealfall sollten im RHEED-Beugungsbild keine Reflexe sichtbar werden, die auf Si-Inseln zurückzuführen sind.

In der Praxis hat sich gezeigt, dass entsprechende Depositionsbedingungen nur sehr schwer realisierbar sind, da hierfür eine sehr genaue Bestimmung der Aufdampfraten von C_{60} und Si erforderlich ist. Das Auflösungsvermögen der Schwingquarzsensoren erwies sich hierfür als nicht ausreichend.

Aus diesem Grund wurde die RHEED-Analytik als Hilfsmittel verwendet, um eine verbesserte Kontrolle über die siliziumreichen Wachstumsbedingungen zu erlangen. Anhand der RHEED-Beugungsbilder in Abb. 6.16(e) bis (h) soll die experimentelle Vorgehensweise erläutert werden.

Für das Beugungsbild am Substrat gelten die gleichen Aussagen wie für Abb. 6.16(a). Streaks weisen wiederum auf eine relativ glatte unrekonstruierte 3C-SiC(001)-Oberfläche hin. Vor Beginn der Depositionsphase wurde die Si-Rate mit Hilfe des Schwingquarzsensors so eingestellt, dass ein Si:C-Verhältnis von etwa eins gegeben war. Nach Öffnen des Substratshutters wurde die Si-Rate langsam erhöht, wobei die Veränderungen im Beugungsbild beobachtet wurden.

Nach 1 min sind schwache Rekonstruktionsstreaks zu erkennen, die jeweils in der Mitte zwischen zwei Hauptstreaks liegen. Da sich im $[110]$ - und $[1\bar{1}0]$ -Azimut identische Beugungsbilder ergaben, kann auf eine 3C-SiC(001)(2×1)-Rekonstruktion in zwei senkrecht zueinander stehenden Domänen geschlossen werden. Aus der Literatur ist bekannt, dass diese Rekonstruktion auf eine Si-Terminierung der 3C-SiC(001)-Oberfläche zurückzuführen ist [132].

Bei nochmaliger geringfügiger Erhöhung der Si-Rate treten nach 5 min weitere schwache Streaks im Beugungsbild auf. Basierend auf ihrer Lage zwischen den Hauptstreaks sind sie mit einer (3×2)-Rekonstruktion der Oberfläche verknüpft. Da wiederum im $[110]$ - und $[1\bar{1}0]$ -Azimut identische Beugungsbilder zu beobachten waren, kann gefolgert werden, dass auch diese Rekonstruktion in zwei zueinander senkrecht stehenden Domänen vorliegt. Hervorgerufen wird sie durch zusätzliche Si-Adsorption auf der (2×1)-rekonstruierten Oberfläche [132, 133].

In den folgenden 5 min der Schichtabscheidung wurde die Si-Rate nicht mehr weiter erhöht, um zu vermeiden, dass die Bildung von Si-Inseln einsetzt. Das RHEED-

Beugungsbild in Abb. 6.16(h) verdeutlicht, dass hierbei die (3×2) -Rekonstruktion der Oberfläche aufrecht erhalten wurde. Schwache Beugungsreflexe lassen das einsetzende Wachstum von 3C-SiC-Zwillingen erster Ordnung erkennen.

Zusammenfassend kann anhand Abb. 6.16 festgestellt werden, dass die Schichtabscheidung unter kohlenstoffreichen Bedingungen zu RHEED-Beugungsbildern führt, die ausschließlich Transmissionsbeugungsreflexe enthalten. Dieser Sachverhalt weist auf eine im Vergleich zum Substrat rauere 3C-SiC-Oberfläche hin und lässt somit schließen, dass es sich beim vorliegenden Wachstumsmodus um ein epitaktisches Inselwachstum handelt. Im Falle siliziumreicher Depositionsbedingungen sind deutliche Streaks in den Beugungsbildern zu erkennen, die auf eine relativ glatte Oberfläche während des epitaktischen 3C-SiC-Wachstums hinweisen. Die Tatsache, dass diese Streaks während der Schichtabscheidung nicht durch Transmissionsbeugungsreflexe abgelöst wurden, legt nahe, dass ein 3C-SiC-Lagenwachstum stattgefunden hat. Da in diesem Wachstumsmodus eine wesentlich höhere Schichtqualität erreicht werden kann als im dreidimensionalen Inselwachstum, sind für das homoepitaktische 3C-SiC-Wachstum siliziumreiche Abscheidebedingungen zu favorisieren.

Weitere RHEED-Beugungsbilder an den beiden betrachteten Proben sind in Abb. 6.17 dargestellt. Sie wurden während der verbleibenden 200 min der Schichtabscheidung entlang $[110]$ -3C-SiC aufgenommen und verdeutlichen die weiteren Charakteristika im homoepitaktischen 3C-SiC-Wachstum.

Nach 30 min Deposition unter kohlenstoffreichen Bedingungen zeigt das Beugungsbild in Abb. 6.17(a) nahezu keine Veränderung zu Abb. 6.16(d). Am Ende der Schichtabscheidung hingegen sind neben den Beugungsreflexen des epitaktischen orientierten 3C-SiC auch Zwillingsreflexe erster Ordnung und $15,79^\circ$ -Streaks zu erkennen. Die Zwillingsbildung setzte etwa 45 min nach Beginn der Deposition ein. Die $15,79^\circ$ -Streaks wurden nach etwa 60 min sichtbar und gewannen bis 210 min stetig an Intensität. Hieraus kann gefolgert werden, dass sich im betreffenden Zeitraum zunehmend $\{111\}$ -Facetten der 3C-SiC-Zwillinge erster Ordnung gebildet haben. Da diese Facettenbildung mit Korntyp 2 verknüpft ist, wird deutlich, dass die Schicht neben der epitaktischen Hauptorientierung auch einen gewissen Anteil an Kristalliten des Typs 2 beinhaltet.

Aufgrund von Instabilitäten in der Si-Depositionsrate konnten die siliziumreichen Wachstumsbedingungen in Abb. 6.16(e) bis (h) nur etwa 15 min lang aufrecht erhal-

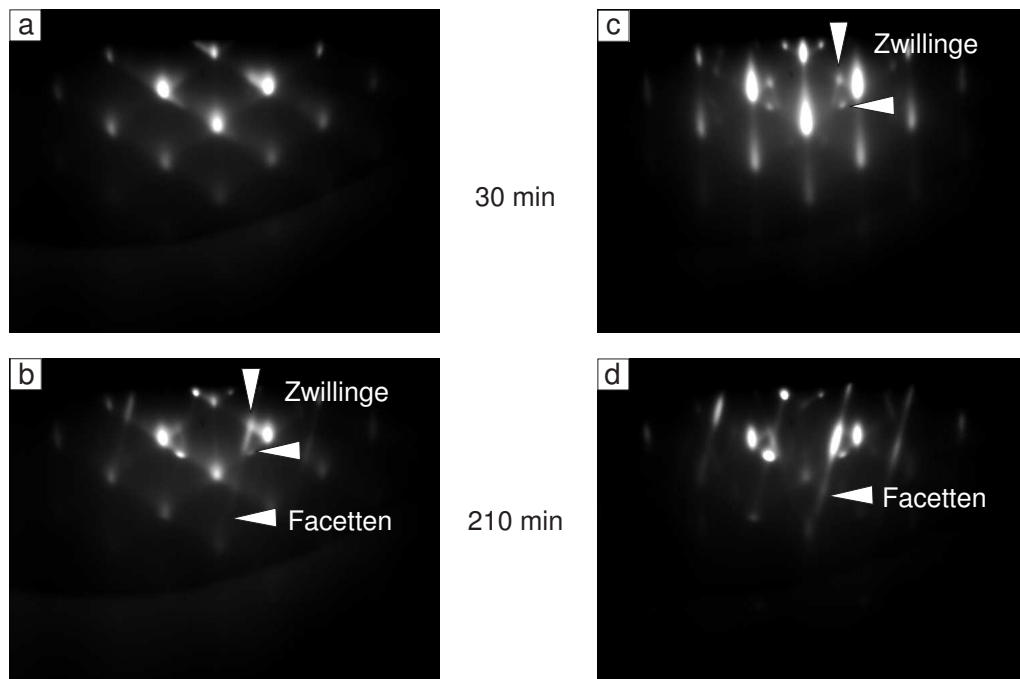


Abb. 6.17: RHEED-Beugungsbilder im $[110]$ -Azimut während des homoepitaktischen 3C-SiC-Schichtwachstums auf Substrat 1. links: Kohlenstoffreiche Wachstumsbedingungen; rechts: Übergang von siliziumreichen Wachstumsbedingungen zu $\text{Si:C} \approx 1$

ten werden. In den restlichen 195 min der Depositionsphase lag ein Si:C -Verhältnis von etwa eins in der Gasphase vor. Abb. 6.17(c) zeigt die Auswirkungen auf das 3C-SiC-Wachstum nach 30 min. Die Streaks verlieren zunehmend an Intensität und Transmissionsbeugungsreflexe des 3C-SiC treten immer stärker hervor. Es kommt folglich zu einer Aufräumung der 3C-SiC-Oberfläche, was vermuten lässt, dass ein Übergang vom Lagen- zum Inselwachstum stattgefunden hat. Darüber hinaus kann im Vergleich zu Abb. 6.16(h) ein erhöhtes Volumen an Zwillingen erster Ordnung festgestellt werden, was sich in einem Intensitätsanstieg der betreffenden Reflexe widerspiegelt. Am Ende der Depositionsphase sind in Abb. 6.17(d) Streaks mit einer Neigung von $15,79^\circ$ gegen die Senkrechte zu erkennen. Im Zeitraum von 45 min bis 210 min haben diese Streaks stetig an Intensität gewonnen. Somit kann auch in diesem Fall auf einen gewissen Anteil an Körnern des Typs 2 in der gewachsenen Schicht geschlossen werden.

Es ist anzumerken, dass in Abb. 6.17(b) bzw. Abb. 6.17(d) lediglich eine der beiden möglichen Richtungen für $15,79^\circ$ -Streaks deutlich zu erkennen ist. Tatsächlich traten während der Schichtabscheidung beide Streakrichtungen mit gleicher Intensität auf. Die asymmetrische Intensitätsverteilung in den Bildern für 210 min liegt darin begründet, dass der Elektronenstrahl der RHEED-Analytik gegen Ende der

Probenherstellung nicht mehr exakt entlang $[110]3\text{C-SiC}$ ausgerichtet war.

Im Falle der Probe, für die in den ersten 15 min der Schichtabscheidung siliziumreiche Depositionsbedingungen herrschten, wurde die Dicke der homoepitaktisch gewachsenen 3C-SiC -Schicht zu 140 nm bestimmt. Addiert man die 3C-SiC -Schichtdicke von 50 nm für das verwendete Substrat 1 hinzu, so ergibt sich eine Gesamtschichtdicke von 190 nm.

Mit Hilfe von ERDA wurde die betreffende Probe auf ihre chemische Zusammensetzung hin untersucht. In Abb. 6.18 ist das zugehörige Tiefenprofil dargestellt.

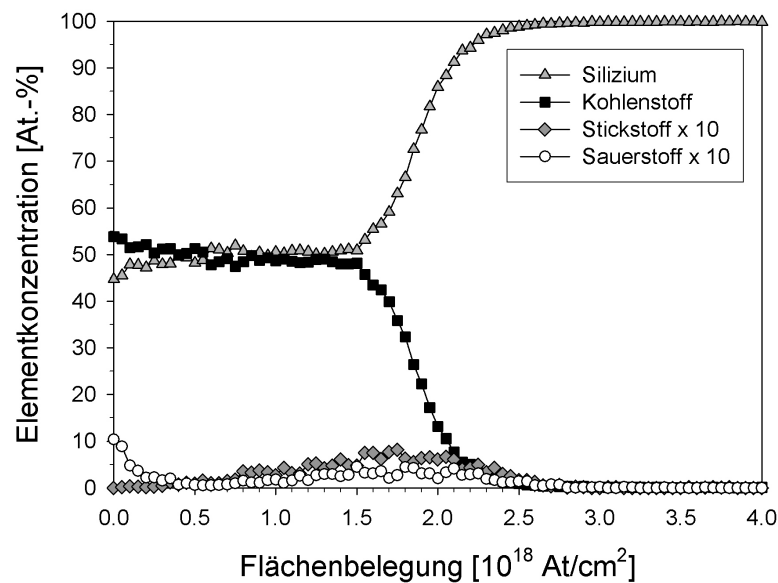


Abb. 6.18: ERDA-Tiefenprofil an einer 140 nm dicken 3C-SiC -Schicht auf Substrat 1. In den ersten 15 min der Schichtabscheidung herrschten siliziumreiche Wachstumsbedingungen. In den verbleibenden 195 min der Deposition betrug das Si:C-Verhältnis in der Gasphase etwa eins. Berücksichtigt man die 3C-SiC -Schichtdicke von 50 nm für das Substrat 1, so ergibt sich eine Gesamtschichtdicke von 190 nm.

Über die gesamte Schichtdicke hinweg liegt eine $\text{Si:C}=1:1$ Stöchiometrie vor. Lediglich an der Oberfläche kann ein leicht erhöhtes Kohlenstoffsignal festgestellt werden. Der Grund für diese Erhöhung ist vermutlich, wie in Abschnitt 6.2 diskutiert, eine geringfügige Bedampfung der 3C-SiC -Oberfläche mit C_{60} -Molekülen während der Abkühlphase der Probe nach der Schichtabscheidung. Da im Zeitraum der siliziumreichen Abscheidebedingungen das Si:C-Verhältnis in der Gasphase nur geringfügig über eins hinaus erhöht wurde, weist das Tiefenprofil keinen überstöchiometrischen Anteil an Si auf.

Wie in Abschnitt 6.2 erläutert, ist der relativ breite Übergangsbereich zwischen

SiC-Schicht und Si-Substrat auf die Rauigkeit der SiC-Oberfläche und der SiC/Si-Grenzfläche zurückzuführen.

Die geringe Kontamination der gewachsenen 3C-SiC-Schicht mit maximal 0,5 at% Sauerstoff und 0,8 at% Stickstoff resultiert aus dem Restgasdruck während des Depositionsprozesses. Der erhöhte Sauerstoffanteil nahe der Oberfläche lässt sich durch eine geringe Bedeckung der Schicht mit Wasser erklären.

Die 3C-SiC-Schicht, die unter kohlenstoffreichen Bedingungen gewachsen wurde, weist eine Dicke von 90 nm auf. Unter Berücksichtigung der 3C-SiC-Schichtdicke von 50 nm im Pseudosubstrat ergibt sich somit eine Gesamtschichtdicke von 140 nm. Abb. 6.19 zeigt das ERDA-Tiefenprofil der betreffenden Probe.

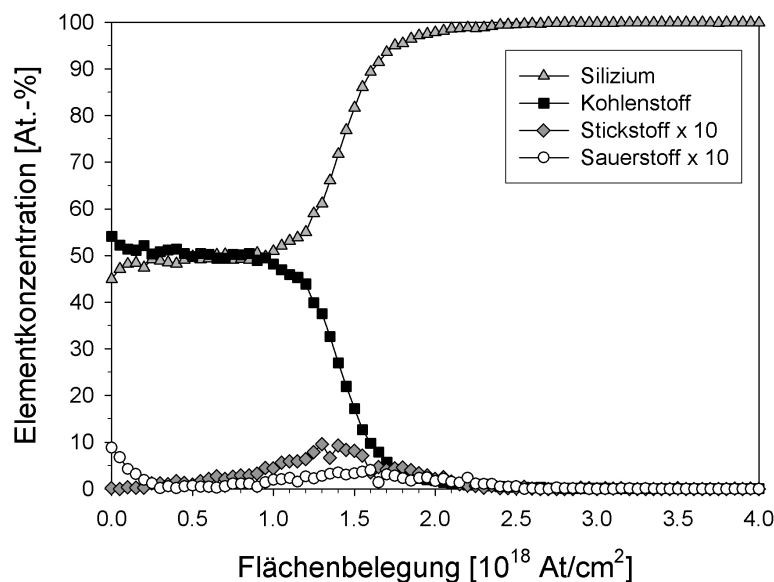


Abb. 6.19: ERDA-Tiefenprofil an einer 90 nm dicken 3C-SiC-Schicht auf Substrat 1. Während des gesamten Depositionsprozesses von 210 min lagen kohlenstoffreiche Wachstumsbedingungen vor. Bezüglich der Depositionsraten von C₆₀ und Si wurde ein Si:C-Verhältnis von 0,7 eingestellt. Zusammen mit der 3C-SiC-Schichtdicke von 50 nm im Substrat 1 beträgt die Gesamtschichtdicke 140 nm.

Auch in diesem Fall ist über die gesamte Schichtdicke hinweg eine Si:C=1:1 Stöchiometrie festzustellen, obwohl C₆₀ und Si mit einem Si:C-Verhältnis von 0,7 aufgedampft wurden. Nur im oberflächennahen Bereich liegt ein leicht erhöhter Kohlenstoffanteil vor. Dieser Sachverhalt lässt sich folgendermaßen erklären:

Das homoepitaktische 3C-SiC-Wachstum erfolgt durch Reaktion der C-Atome aus den zerbrochenen C₆₀-Molekülen mit den aufgedampften Si-Atomen. Herrscht bezüglich der Depositionsraten von C₆₀ und Si ein Si:C-Verhältnis kleiner eins, so

werden die C-Atome aus den fragmentierten C_{60} -Molekülen nicht vollständig zu 3C-SiC umgesetzt. Es resultiert eine Bedeckung der Oberfläche mit Kohlenstoff.

REM-Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit haben gezeigt, dass es unter kohlenstoffreichen Wachstumsbedingungen zu keiner Hohlraumbildung im Silizium des Pseudosubstrats kommt. Hieraus lässt sich folgern, dass der Si-Mangel zur SiC-Synthese an der Schichtoberfläche nicht durch Si-Diffusion aus dem Silizium des Pseudosubstrats ausgeglichen werden kann, da die ionenstrahlsynthetisierte 3C-SiC-Schicht als Diffusionsbarriere wirkt.

Wie in Abschnitt 3.3 erläutert, wird die Fragmentation des C_{60} -Moleküls auf 3C-SiC bei hohen Temperaturen wahrscheinlich dadurch verursacht, dass seine C-Atome kovalente Bindungen mit Si-Atomen der Oberfläche eingehen. Dadurch brechen intramolekulare C-C-Bindungen auf und das C_{60} wird instabil. Treffen nun C_{60} -Moleküle auf Bereiche der 3C-SiC-Oberfläche auf, die bereits eine Bedeckung mit Kohlenstoff aufweisen, so zerbrechen sie vermutlich nicht, da keine kovalenten Bindungen zu Si-Atomen ausgebildet werden können. Stattdessen desorbieren sie mit einer gewissen Rate wieder von der Oberfläche. Als Folge davon steigt die Bedeckung der SiC-Oberfläche mit Kohlenstoff nicht kontinuierlich an, wenn bezüglich der Depositionsraten von C_{60} und Si ein Si:C-Verhältnis kleiner eins vorliegt. Vielmehr stellt sich eine Maximalbedeckung ein, die vom Si:C-Verhältnis in der Gasphase abhängig ist.

Die in-situ RHEED-Untersuchungen unter kohlenstoffreichen Depositionsbedingungen unterstützen die Vermutung einer limitierten Bedeckung mit C-Atomen, da während der gesamten Schichtabscheidung epitaktisches 3C-SiC-Wachstum beobachtet werden konnte. Eine kontinuierliche Zunahme des Kohlenstoffüberschusses an der Oberfläche hätte dazu geführt, dass die Epitaxie nach einer gewissen Zeit verloren geht, ähnlich wie es bei einem Si-Überangebot unter siliziumreichen Bedingungen der Fall ist.

Dennoch bewirkt der Si-Mangel an der Schichtoberfläche, dass die 3C-SiC-Wachstumsgeschwindigkeit lokal variiert. Es kommt zu einer Aufrauung der 3C-SiC-Oberfläche, die sich in den RHEED-Aufnahmen in Form von Transmissionsbeugungsreflexen widerspiegelt (s. Abb. 6.16(a) bis (d)).

Gleichzeitig ist unter kohlenstoffreichen Wachstumsbedingungen festzustellen, dass die Si-Depositionsrate den limitierenden Faktor in der Zunahme der 3C-SiC-Schichtdicke pro Zeiteinheit darstellt. Für die Herstellung der beiden in diesem Abschnitt betrachteten Proben wurden C_{60} -Fluss und Depositionsdauer gleich gewählt. Trotzdem besitzen die homoepitaktisch gewachsenen Schichten deutlich unterschiedliche Dicken von 90 nm und 140 nm. Das Schichtdickenverhältnis von $(0,6 \pm 0,2)$ stimmt

im Rahmen der Messgenauigkeit mit dem Verhältnis der jeweiligen Si-Depositionsraten von $(0,7 \pm 0,1)$ überein.

Wie bereits angesprochen, lässt auch das ERDA-Tiefenprofil der Probe, die unter kohlenstoffreichen Bedingungen gewachsen wurde, ein leicht erhöhtes C-Signal nahe der Schichtoberfläche erkennen. Für diese Abweichung von der Si:C=1:1 Stöchiometrie können zwei Ursachen verantwortlich gemacht werden. Zum einen weist die Schicht gemäß den vorangegangenen Ausführungen eine gewisse Bedeckung mit Kohlenstoff auf, die aus den Abscheidebedingungen resultiert. Zum anderen aber ist es auch hier möglich, dass C_{60} -Moleküle während des Abkühlvorgangs der Probe auf ihre Schichtoberfläche gelangt sind.

Der geringe Fremdatomgehalt der Schicht von maximal 1,0 at% Stickstoff und 0,5 at% Sauerstoff liegt wiederum im Restgasdruck während des homoepitaktischen Wachstums begründet. Adsorbiertes Wasser ist die Ursache für den erhöhten Sauerstoffgehalt an der Oberfläche.

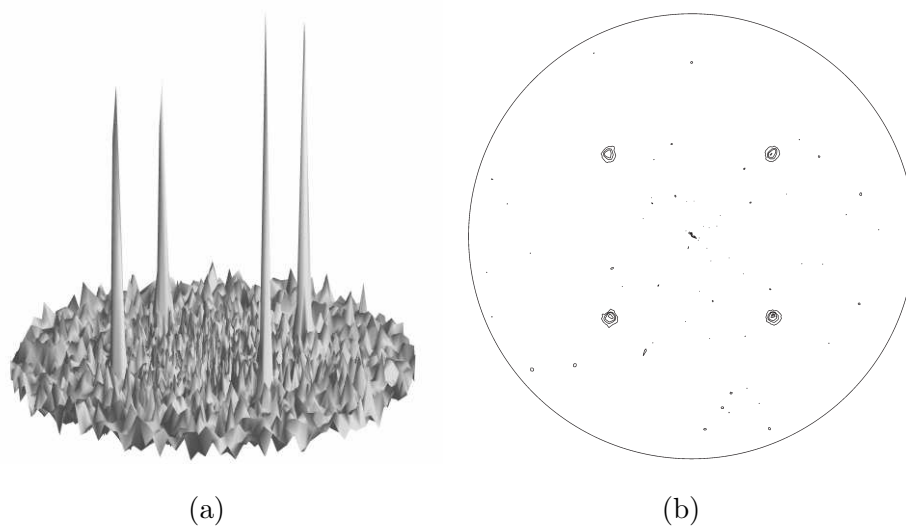


Abb. 6.20: Polfigurmessung an einer homoepitaktisch gewachsenen 3C-SiC-Schicht auf Substrat 1. Die Bragg-Bedingung wurde für einen Netzebenenabstand von $d = 0,251$ nm eingestellt. Die Schichtabscheidung erfolgte unter kohlenstoffreichen Bedingungen mit einem Si:C-Verhältnis von 0,7 in der Gasphase. (a) 3D-Darstellung und (b) 2D-Darstellung

Mit Hilfe der Röntgendiffraktometrie wurde die Struktur und Textur der beiden Schichten untersucht, die mit unterschiedlichen Si:C-Verhältnissen in der Gasphase gewachsen wurden. In Abb. 6.20 und Abb. 6.21 sind die Polfigurmessungen für

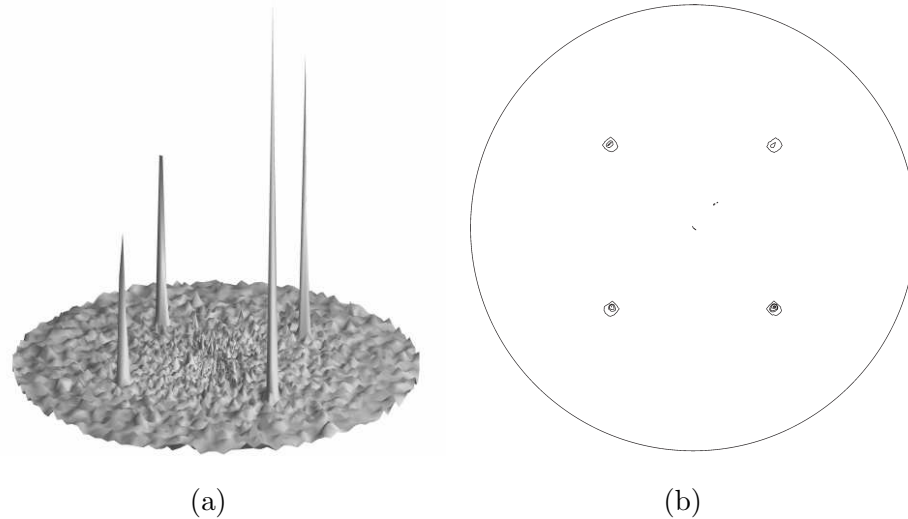


Abb. 6.21: Polfigurmessung für $d = 0,251$ nm an einer homoepitaktisch gewachsenen 3C-SiC-Schicht auf Substrat 1. In den ersten 15 min des Depositionsprozesses lagen siliziumreiche Wachstumsbedingungen vor. In den restlichen 195 min betrug das Si:C-Verhältnis in der Gasphase etwa eins. (a) 3D-Darstellung und (b) 2D-Darstellung

einen Netzebenenabstand von $d = 0,251$ nm dargestellt. Poldichtemaxima können in diesem Fall sowohl durch $\{111\}$ -3C-SiC- als auch durch $\{00n\}$ - n H/R-SiC-Reflexe verursacht werden.

Beide Messungen weisen lediglich vier intensitätsstarke Poldichtemaxima bei $\chi=55^\circ$ auf, die gemäß der Simulation in Abb. 5.16(d) durch (001)-orientiertes 3C-SiC erklärt werden können. Aus dem Vergleich mit der Referenz-Polfigurmessung an Substrat 1 (s. Abb. 6.1(a)) geht hervor, dass in beiden Fällen homoepitaktisches Wachstum stattgefunden hat. Dies geht konform mit den Ergebnissen der durchgeführten RHEED-Untersuchungen.

Allerdings konnten in den RHEED-Beugungsbildern an beiden Proben auch Reflexe von 3C-SiC-Zwillingen erster Ordnung beobachtet werden. Das Fehlen entsprechender Zwillingspoldichtemaxima in den Polfigurmessungen lässt folgern, dass das Volumen an Zwillingen erster Ordnung in den Schichten relativ gering ist.

Die Polfigurmessung an der unter kohlenstoffreichen Bedingungen gewachsenen 3C-SiC-Schicht weist im Vergleich zur Messung in Abb. 6.21 ein leicht höheres Untergrundrauschen auf. Ursache hierfür ist ein etwas schlechteres Signalrauschverhältnis, das aus der geringeren Schichtdicke resultiert.

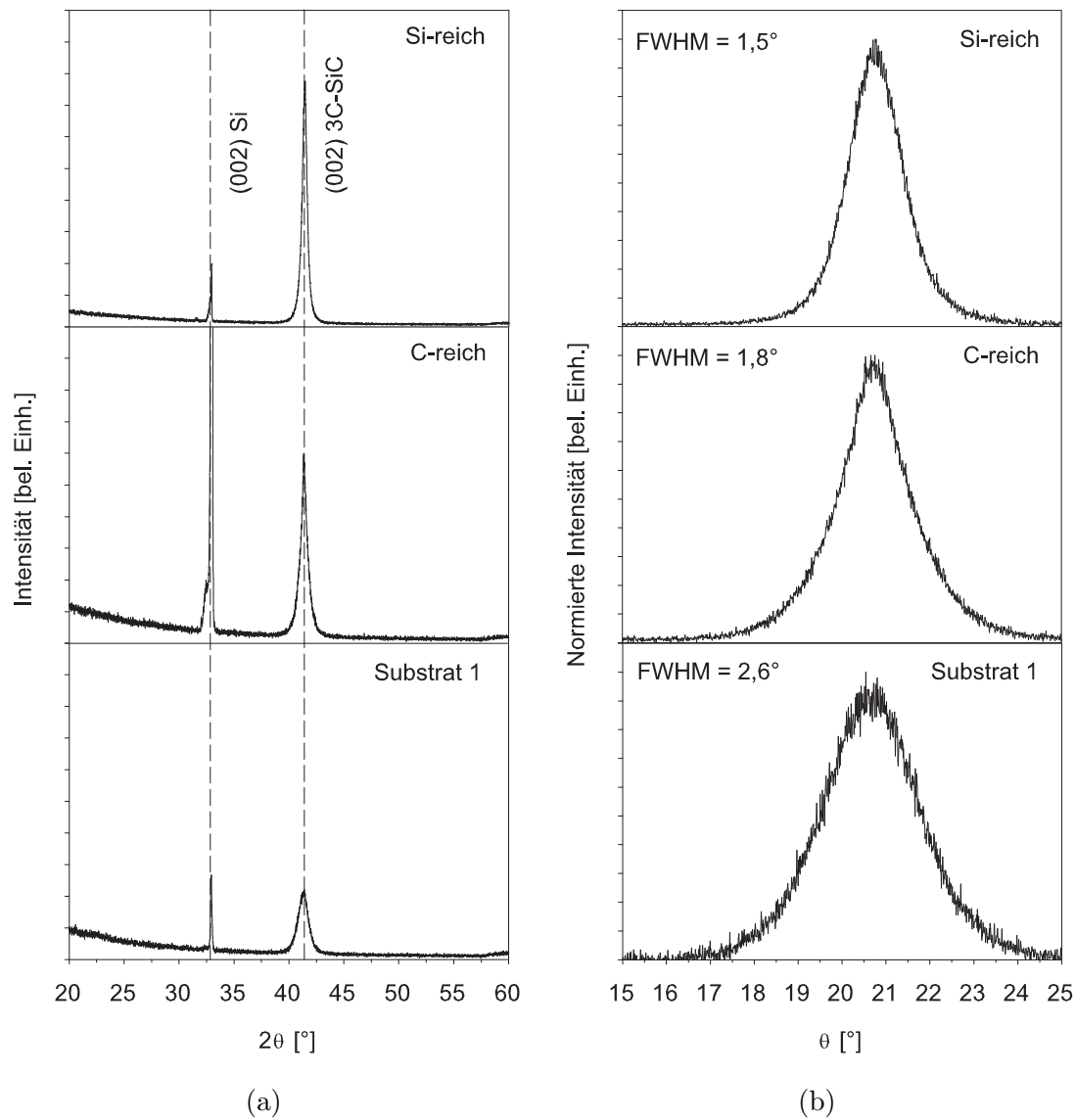


Abb. 6.22: (a) θ - 2θ -Röntgen-Beugungsdiagramme für die Schichtabscheidung mit unterschiedlichem Si:C-Verhältnis bezüglich der Depositionsraten von C_{60} und Si. Als Referenz ist die Messung an Substrat 1 ebenfalls dargestellt. (b) Rocking-Kurve des (002)-Reflexes von 3C-SiC

Abb. 6.22(a) zeigt vergleichend die θ - 2θ -Beugungsdiagramme für die beiden unterschiedlichen Abscheidebedingungen. Als Referenz ist die Messung am unbeschichteten Substrat 1 ebenfalls abgebildet. Im Einklang mit den Polfigurmessungen ist in allen drei Spektren lediglich der (002)-Reflex des 3C-SiC als Schichtreflex zu beobachten.

Die zugehörigen Rocking-Kurven des (002)-3C-SiC-Reflexes sind in Abb. 6.22(b) gegenübergestellt. Im Vergleich zum unbeschichteten Substrat 1, das eine Halbwertsbreite von $2,6^\circ$ aufweist, konnte unter beiden Abscheidebedingungen die mittlere Verkipfung der SiC-Kristallite um die Probennormale deutlich reduziert werden. Im Falle der 90 nm dicken 3C-SiC-Schicht, für die der Depositionsprozess unter kohlenstoffreichen Bedingungen stattfand, beträgt die Halbwertsbreite $1,8^\circ$. Für die 140 nm dicke Schicht, die in den ersten 15 min unter siliziumreichen Bedingungen und anschließend mit Si:C ≈ 1 in der Gasphase gewachsen wurde, ist der Messung eine etwas geringere Halbwertsbreite von $1,5^\circ$ zu entnehmen. Folglich liegt die Vermutung nahe, dass letztgenannte Abscheidebedingung zu einer vergleichsweise besseren polaren Texturentwicklung geführt hat. Dennoch kann diesbezüglich anhand der vorliegenden Messdaten keine eindeutige Aussage getroffen werden, da die Vergleichbarkeit der beiden Proben aufgrund der unterschiedlich gewachsenen 3C-SiC-Schichtdicke nicht gegeben ist.

6.4 Wachstum unter Si-reichen Depositionsbedingungen

Zur Klärung der Frage, ob durch siliziumreiche Abscheidebedingungen eine Verbesserung der Schichtqualität im homoepitaktischen Wachstum auf 3C-SiC(001)-Pseudosubstraten erreicht werden kann, wurden ausgewählte Proben mittels XTEM untersucht. Im Gegensatz zum vorangegangenen Abschnitt 6.3 wurden zur Synthese der betreffenden 3C-SiC-Schichten die Si-reichen Wachstumsbedingungen über den gesamten Depositionsprozess hinweg aufrecht erhalten. Signifikante Veränderungen hinsichtlich der Schichtqualität können damit eindeutig dem geringfügigen Überangebot von Si aus der Gasphase zugeordnet werden.

Im nachfolgenden wird beispielhaft eine 3C-SiC-Schicht betrachtet, die bei einer Temperatur von 950°C auf Substrat 1 gewachsen wurde. Die Substratpräparation erfolgte dabei durch Vorbehandlung im Wasserstoffplasma. Die verwendeten Parameter sind der Tab. 7.2 im Anhang zu entnehmen.

Im Depositionsprozess wurden C_{60} und Si für 15 min simultan aufgedampft, wo-

bei der C_{60} -Fluss $1,8 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ betrug. Siliziumreiche Wachstumsbedingungen wurden mit Hilfe der in Abschnitt 6.3 geschilderten Vorgehensweise realisiert. Ausgehend von einem Si:C-Verhältnis von etwa eins in der Gasphase wurde unmittelbar nach Öffnen des Substratshutters die Si-Rate langsam erhöht, bis das RHEED-Beugungsbild entlang $[110]$ 3C-SiC zusätzliche Streaks aufwies, die auf eine (3×2) -Rekonstruktion der 3C-SiC(001)-Oberfläche schließen lassen. Das Beugungsbild signalisiert auf diese Weise das Erreichen siliziumreicher Abscheidebedingungen.

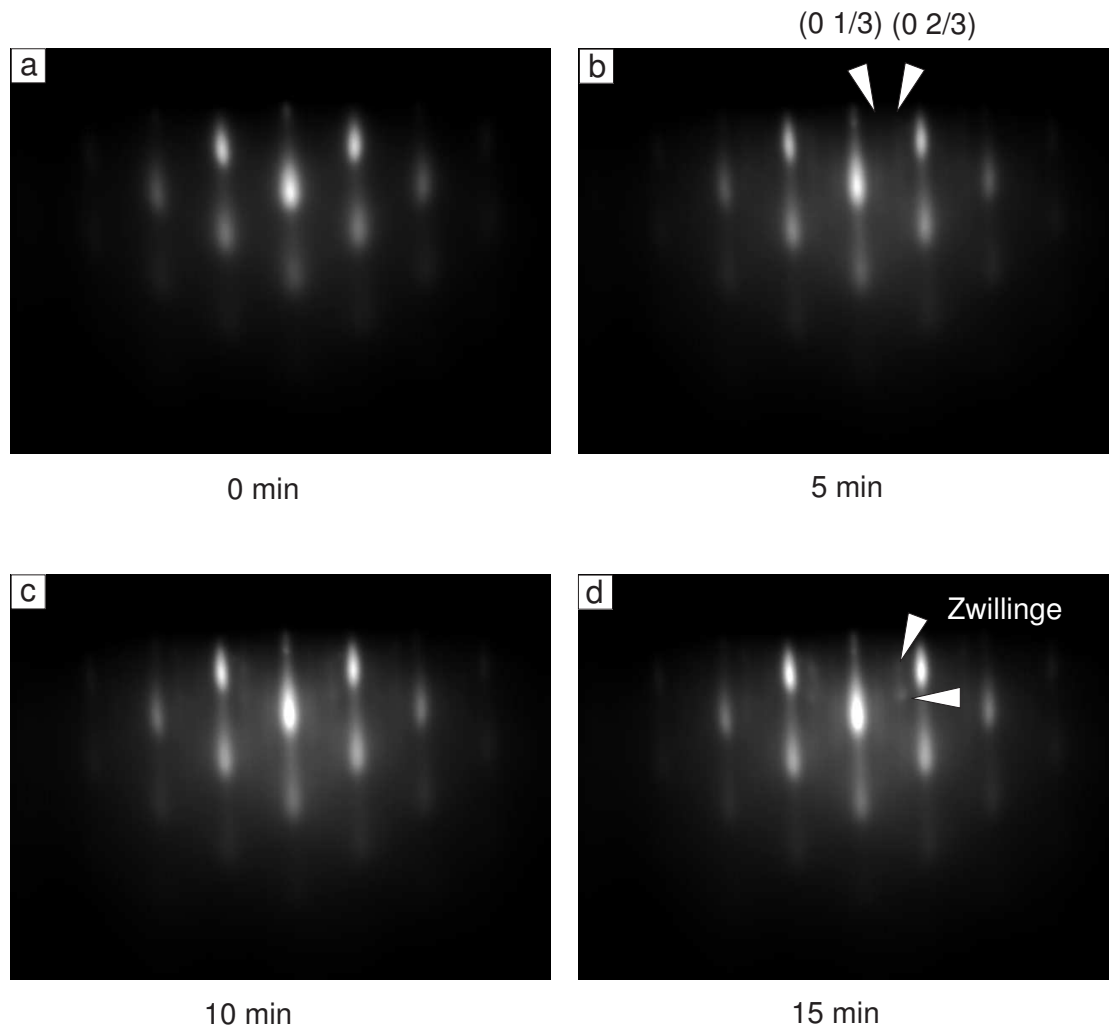


Abb. 6.23: RHEED-Beugungsbilder im $[110]$ -Azimut an einer homoepitaktisch gewachsenen 3C-SiC-Schicht auf Substrat 1. Während des gesamten Depositionsprozesses von 15 min Länge herrschten siliziumreiche Wachstumsbedingungen.

Anschließend wurde das Si:C-Verhältnis bezüglich der Depositionsraten konstant gehalten. Schwankungen in der Si-Rate, die aus der Elektronenstrahlverdampfung resultieren, wurden manuell ausgeglichen. Zu diesem Zweck wurde das RHEED-Beugungsbild im $[110]$ -Azimut beobachtet und der Emissionsstrom des Elektronen-

strahlverdampfers so nachgeregelt, dass die Streaks der (3×2) -Rekonstruktion nicht an Intensität verloren, sich aber auch keine Si-Transmissionsbeugungsreflexe zeigten (s. Abb. 6.23(b) bis (d)).

In den letzten 5 min der Depositionsphase konnten schwache Beugungsreflexe beobachtet werden, die auf das beginnende Wachstum von 3C-SiC-Zwillingen erster Ordnung hinweisen (s. Abb. 6.23(d)).

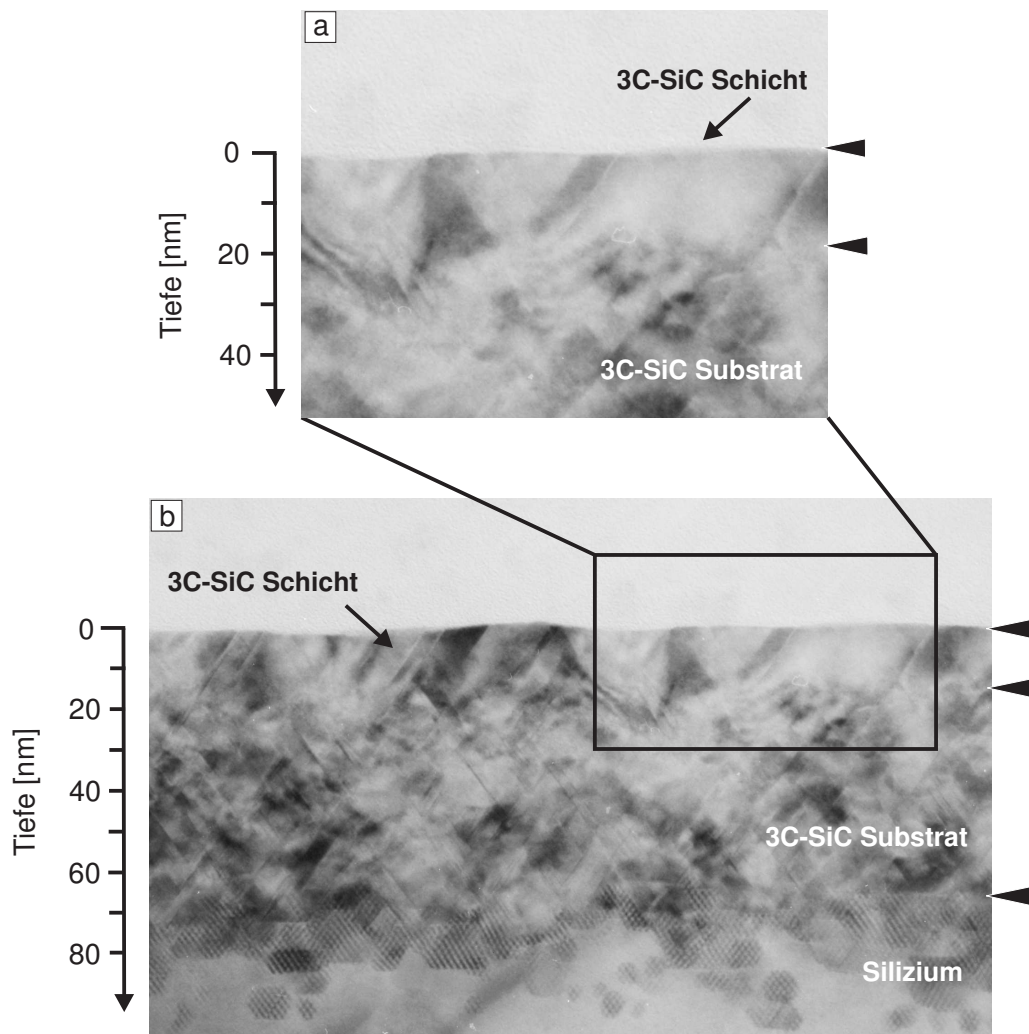


Abb. 6.24: TEM-Hellfeldaufnahme an einer Probe, für die das homoepitaktische 3C-SiC-Wachstum unter siliziumreichen Bedingungen stattfand. Gezeigt ist der Schnitt durch die (110) 3C-SiC-Ebene. Die Dicke der abgeschiedenen 3C-SiC-Schicht beträgt etwa 20 nm. Die Grenzfläche zum 3C-SiC(001)-Pseudosubstrat ist mit einem Marker gekennzeichnet.

In Abb. 6.24 ist die TEM-Hellfeldaufnahme der betreffenden Probe dargestellt. Über große laterale Bereiche hinweg wurde eine zusammenhängende 3C-SiC-Schicht ohne erkennbare Korngrenzen gewachsen. Die Schichtdicke lässt sich anhand der Tiefenskala zu etwa 20 nm bestimmen. Im Vergleich zum 3C-SiC des Pseudosubstrats

ist eine deutlich geringere Defektdichte festzustellen, die sich in Form von größeren Bereichen mit geringer Kontrastvariation widerspiegelt. Dieser Umstand ermöglicht auch eine relativ genaue Lokalisierung der Grenzfläche zwischen 3C-SiC-Substrat und Schicht. In Abb. 6.24(a) bzw. (b) ist sie durch einen Marker gekennzeichnet.

Die Feinbereichsbeugung in Abb. 6.25 entlang $[110]_{3C-SiC}$ bestätigt, dass homoepitaktisches 3C-SiC-Wachstum erreicht wurde, da lediglich eine Orientierungsbeziehung zwischen 3C-SiC und Si vorliegt. Reflexe von Zwillingen erster Ordnung können nicht beobachtet werden, was folgern lässt, dass im Probenbereich der Beugungsaufnahme entsprechende Orientierungen des 3C-SiC nicht vorlagen. Ein geringer Anteil von Zwillingen erster Ordnung in der Schicht geht dennoch aus den Ergebnissen der RHEED-Untersuchungen hervor.

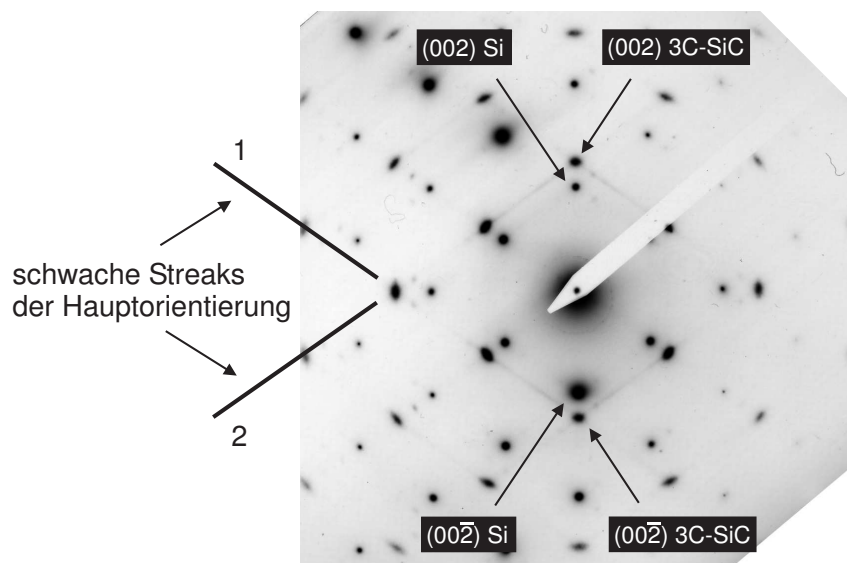


Abb. 6.25: TEM-Finbereichsbeugung entlang $[110]_{3C-SiC}$ für die 3C-SiC-Schichtsynthese unter siliziumreichen Bedingungen. Die Streaks in den Richtungen 1 und 2 sind mit Stapelfehlern auf den $\{111\}$ -Ebenen in der epitaktischen Grundorientierung des 3C-SiC korreliert. Plättchenförmiges Wachstum in Form von Zwillingslamellen erster Ordnung kann als Ursache für die Streakbildung ausgeschlossen werden, da entsprechende Zwillingsreflexe nicht existent sind.

Typisch für die homoepitaktisch gewachsene 3C-SiC-Schicht in Abb. 6.24 sind einzelne streifenförmige Kontrastvariationen, die einen spitzen Winkel von 55° mit der 3C-SiC(001)-Oberfläche des Pseudosubstrats einschließen. Mögliche Ursachen hierfür sind Stapelfehler oder Zwillingslamellen erster Ordnungen, die auf $\{111\}$ -Ebenen der epitaktischen Grundorientierung des 3C-SiC liegen. In der Feinbereichs-

beugung äußern sich diese Defekte in Form von schwachen Streaks in den beiden markierten Richtungen. Zwillingslamellen können jedoch im Bereich der vorliegenden Beugungsaufnahme ausgeschlossen werden, da, wie bereits angesprochen, entsprechende Zwillingsreflexe nicht existent sind.

Ein wichtiger Aspekt der Schichtabscheidung unter siliziumreichen Bedingungen ist die Tatsache, dass weder die Feinbereichsbeugung in Abb. 6.25 noch die RHEED-Beugungsbilder in Abb. 6.23 Streakrichtungen enthalten, die auf ein 3C-SiC-Wachstum im Korntyp 2 gemäß Abb. 5.10 hinweisen. Durch das Fehlen dieses Korntyps wird die Problematik des Schichtwachstums in zwei verschiedenen Korntypen mit unterschiedlichen 3C-SiC-Orientierungen und die Bildung von Zwillingen zweiter Ordnung vollständig vermieden. Als Folge davon ist eine deutliche Reduktion der Defektdichte im homoepitaktischen Wachstum zu erwarten.

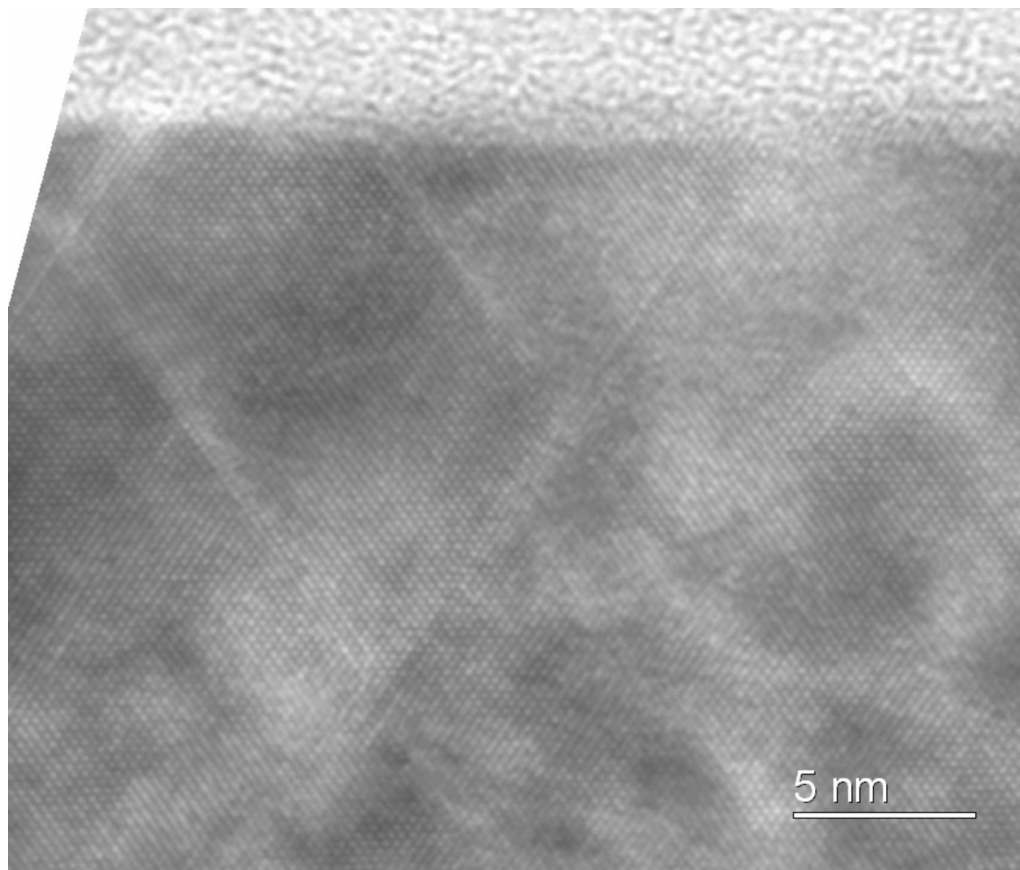


Abb. 6.26: HRTEM-Aufnahme zur Schichtabscheidung unter siliziumreichen Wachstumsbedingungen. Gezeigt ist der Schnitt durch die 3C-SiC(001)-Ebene.

Abb. 6.26 zeigt eine Hochauflösungs-TEM-Aufnahme an der unter siliziumreichen Bedingungen gewachsenen 3C-SiC-Schicht. Die Aufnahme umfasst nahezu die ge-

samte Schichtdicke von 20 nm. Die Grenzfläche zum 3C-SiC(001)-Pseudosubstrat befindet sich knapp außerhalb des unteren Bildbereiches. Die geringe Defektdichte verdeutlicht, dass im Vergleich zu allen anderen in dieser Arbeit diskutierten 3C-SiC-Schichten die beste Schichtqualität erreicht wurde.

In der Literatur existieren eine wenige Arbeiten zur 3C-SiC-Schichtabscheidung mittels MBE unter siliziumreichen Wachstumsbedingungen [134, 135]. In Übereinstimmung mit den Ergebnissen dieser Arbeit wurde auch hier festgestellt, dass unter den genannten Bedingungen die höchste kristalline Qualität erzielt wird. Molekulardynamische Simulationen lassen vermuten, dass der Grund hierfür die Aufrechterhaltung der (3×2) -Rekonstruktion während des Depositionsprozesses ist. Die genauen Mechanismen sind jedoch bis heute noch völlig unbekannt.

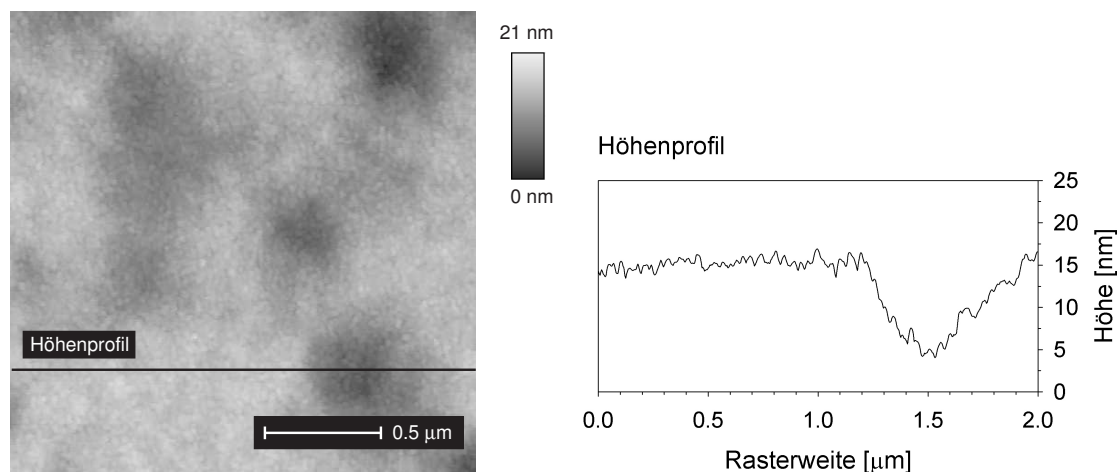


Abb. 6.27: AFM-Aufnahme zur Schichtabscheidung unter siliziumreichen Wachstumsbedingungen. Die Rasterweite beträgt $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$.

Topographie und Rauigkeit der unter siliziumreichen Bedingungen gewachsenen 3C-SiC-Schicht wurde mit Hilfe der Rasterkraftmikroskopie untersucht. In Abb. 6.27 ist ein $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$ großer Bereich der Probenoberfläche dargestellt. Dunklere Bereiche lassen Mulden erkennen, die auf die Topographie des verwendeten Substrats 1 (s. Abb. 6.3) zurückzuführen sind. Der Verlauf des Höhenprofils zeigt auf, dass die Rauigkeit der Oberfläche überwiegend in der Existenz dieser Vertiefungen begründet liegt. In benachbarten Bereichen werden nur relativ geringe Höhenvariationen beobachtet. Zur Bestimmung der RMS-Rauigkeit der betrachteten Schicht wurden AFM-Aufnahmen an verschiedenen Probenstellen herangezogen. Im Mittel ergab sich ein Wert von $(2,9 \pm 0,2) \text{ nm}$. Ein Vergleich mit der RMS-Rauigkeit des verwendeten Substrats 1 von $(3,1 \pm 0,8) \text{ nm}$ lässt schlussfolgern, dass im Rahmen

der Messgenauigkeit keine Aufrauung der Oberfläche während des Schichtwachstums stattgefunden hat.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass durch simultane Deposition von C_{60} und Si 3C-SiC-Schichten mit hoher kristalliner Qualität epitaktisch auf 3C-SiC-Pseudosubstraten abgeschieden werden können. Voraussetzung hierfür ist jedoch, dass während des gesamten Depositionsprozesses siliziumreiche Wachstumsbedingungen aufrecht erhalten werden. Die RHEED-Analytik konnte hierfür als geeignetes Hilfsmittel identifiziert werden.

Kapitel 7

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden epitaktische 3C-SiC-Schichten auf Si(001)-Substraten und ionenstrahlsynthetisierten 3C-SiC(001)-Pseudosubstraten hergestellt. Die Schichtsynthese erfolgte dabei unter Verwendung eines relativ jungen Verfahrens, das auf der simultanen Deposition von C₆₀-Fullerenen und Si beruht. Zur Realisierung der erforderlichen experimentellen Voraussetzungen wurde eine Ultrahochvakuum-Apparatur konzipiert und aufgebaut. Zusätzlich wurde diese Anlage mit einer RHEED-Analytik ausgestattet, um erstmals das 3C-SiC-Schichtwachstum im Zusammenhang mit dem verwendeten Verfahren untersuchen zu können.

Einen wichtigen Aspekt der Heteroepitaxie von 3C-SiC auf Si(001) stellt das Anfangsstadium des Schichtwachstums in Form von SiC-Inseln auf der Substratoberfläche dar. Aus diesem Grund wurde diese Frühphase des 3C-SiC-Wachstums bei Verwendung einer C₆₀-Kohlenstoffquelle mittels XTEM untersucht. Dabei konnte das epitaktische Wachstum von 3C-SiC-Inseln mit der charakteristischen Orientierungsbeziehung

$$(001) [110] \text{ Si } || (001) [110] \text{ 3C-SiC}$$

nachgewiesen werden. Die Untersuchungen haben aber auch gezeigt, dass bereits in dieser frühen Phase der Schichtabscheidung eine Vielzahl von Defekten auftritt, die ihren Ursprung in der großen Gitterfehlانpassung von 19,73% an der SiC/Si-Grenzfläche oder in der Aufrauung des Substrats durch Si-Diffusion haben. Aufgrund der geringen Stapelfehlerenergie der SiC-Doppellagen gehören auch Stapelfehler und Zwillingsbildung auf den dicht-gepackten {111}-Ebenen zu den typischen Defekten im 3C-SiC-Wachstum.

In der vorliegenden Arbeit wurden 3C-SiC-Schichten auf Si erstmals hohlraumfrei

unter Verwendung einer C_{60} -Kohlenstoffquelle abgeschieden. Zu diesem Zweck wurde simultan zu den C_{60} -Fullerenen auch Silizium mit geeigneter Rate verdampft, so dass während des Depositionsprozesses ein Si:C-Verhältnis von etwa eins in der Gasphase gegeben war. Die synthetisierten 3C-SiC-Schichten wurden anschließend mit Methoden der Dünnschichtcharakterisierung analysiert. Es konnte gezeigt werden, dass stöchiometrisches und epitaktisches 3C-SiC-Wachstum mit der charakteristischen Orientierungsbeziehung

$$(001) [110] \text{ Si} \parallel (001) [110] \text{ 3C-SiC}$$

stattgefunden hat. TEM-Untersuchungen haben verdeutlicht, dass sich die gewachsenen 3C-SiC-Schichten aus einzelnen Körnern zusammensetzen, welche sich vom Substrat bis zur Probenoberfläche erstrecken. Anhand streifenförmiger Kontrastvariationen in den angefertigten Hellfeldaufnahmen konnten zwei verschiedene 3C-SiC-Korntypen identifiziert werden. Im Korntyp 1 liegt das 3C-SiC in der epitaktischen Hauptorientierung vor, wobei Stapelfehler bzw. Zwillingslamellen erster Ordnung auf $\{111\}$ -Ebenen liegen können, die eine Neigung von $54,74^\circ$ gegen die Substratoberfläche aufweisen. Körner vom Typ 2 wachsen in einer Zwillingsorientierung erster Ordnung. In diesem Fall sind Stapelfehler bzw. Zwillingslamellen zweiter Ordnung auf $\{111\}$ -Ebenen zu finden, die eine Neigung von $15,79^\circ$ gegen die Substratoberfläche besitzen. Die während der Schichtdeposition durchgeführten RHEED-Messungen gehen konform mit den Ergebnissen der TEM-Untersuchungen und bestätigen somit die geschilderte Wachstumscharakteristik.

Die Korrelation zwischen Struktur und Textur hohlraumfrei gewachsener 3C-SiC-Schichten und ihrer Schichtdicke wurde mit Hilfe der Röntgenbeugung untersucht. Anhand von Polfigurmessungen wurde gezeigt, dass bei geringer Dicke lediglich 3C-SiC-Zwillinge erster Ordnung in den Schichten enthalten sind. Bei größeren Schichtdicken treten zusätzlich Zwillinge zweiter Ordnung in Form von Zwillingslamellen im Korntyp 2 auf.

Die Halbwertsbreiten der gemessenen Rocking-Kurven verdeutlichen, dass im untersuchten Schichtdickenbereich von 150 nm bis 550 nm keine polare Texturverbesserung erreicht werden konnte. Benachbarte Kristallite in den synthetisierten 3C-SiC-Schichten gehören zum Teil unterschiedlichen Korntypen an und besitzen damit unterschiedliche Orientierungen. Eine Texturverbesserung für Korntyp 1 durch das Überwachsen leicht fehlorientierter Nachbarkristallite des gleichen Typs wird dadurch erschwert. Dennoch ist eine signifikante polare Texturverbesserung bei Schichtdicken von einigen Mikrometern nicht auszuschließen und bleibt experimentell zu

überprüfen.

Als weiteres Ziel konnte im Rahmen der vorliegenden Arbeit erstmals homoepitaktisches 3C-SiC-Wachstum auf ionenstrahlsynthetisierten 3C-SiC(001)-Pseudosubstraten unter Verwendung einer C_{60} -Kohlenstoffquelle demonstriert werden.

Hinsichtlich der kristallinen Qualität der hergestellten Schichten erwies sich die Oberflächenbeschaffenheit der verwendeten Substrate als entscheidender Faktor. Die Oberfläche der unbehandelten Pseudosubstrate waren von einer dünnen amorphen Schicht bedeckt, die ein homoepitaktisches 3C-SiC-Wachstum verhinderten. Zur Entfernung dieser Deckschicht wurden zwei unterschiedliche Methoden verwendet. Im einen Fall wurden die Substrate nach einer Reinigung mit Aceton und Isopropanol in der Depositionskammer für 150 min bei 950°C unter Hochvakuumbedingungen ausgeheizt. Im anderen Fall wurden die Substrate für definierte Zeit einem Wasserstoffplasma ausgesetzt. Mit beiden Verfahren konnten jeweils stöchiometrische und epitaktische 3C-SiC-Schichten auf den 3C-SiC(001)-Pseudosubstraten abgeschieden werden. Deutliche Unterschiede zeigten sich jedoch hinsichtlich der Feinstruktur. Auf dem ausgeheizten Substrat setzt sich die 3C-SiC-Schicht aus kolumnar gewachsenen Kristalliten zusammen, die sich von der Grenzfläche zum Pseudosubstrat bis zur Oberfläche erstrecken. Die Kristallite lassen sich zwei unterschiedlichen Korntypen zuordnen, die mit denen aus der heteroepitaktischen Schichtabscheidung auf Si(001) identisch sind.

Im Falle der Schichtabscheidung auf dem plasmagereinigten 3C-SiC(001)-Pseudosubstrat konnte ein völlig anderes Bild hinsichtlich der Feinstruktur beobachtet werden. TEM-Aufnahmen haben gezeigt, dass über große laterale Bereiche hinweg eine zusammenhängende 3C-SiC-Schicht ohne erkennbare Korngrenzen gewachsen wurde. Im Vergleich zur Schichtsynthese auf dem ausgeheizten Pseudosubstrat ist eine wesentlich geringere Defektdichte festzustellen, die darüber hinaus mit steigender Schichtdicke weiter abnimmt. Kristallite, die dem Typ 2 angehören, sind nur in sehr geringem Maße vorhanden und konnten lediglich in den RHEED-Messungen mit geringer Intensität nachgewiesen werden.

Weitere Experimente zum homoepitaktischen 3C-SiC-Wachstum wurden hinsichtlich des verwendeten Depositionsratenverhältnisses von C_{60} und Si durchgeführt. Die hierfür benutzten Pseudosubstrate wurden basierend auf den vorangegangenen Untersuchungen mit Hilfe eines Wasserstoffplasmas gereinigt. Es wurde festgestellt, dass unter siliziumreichen Depositionsbedingungen, d.h. bei einem Si:C-Verhältnis in der Gasphase, das geringfügig größer eins ist, ein homoepitaktisches 3C-SiC-Lagenwachstum erreicht werden kann. Die so abgeschiedenen 3C-SiC-Schichten

zeichneten sich durch die höchste kristalline Qualität aus, die im Rahmen dieser Arbeit erreicht wurde.

Wird hingegen zur Schichtabscheidung ein Si:C-Verhältnis kleiner eins in der Gasphase gewählt, d.h. findet das 3C-SiC-Wachstum unter kohlenstoffreichen Bedingungen statt, so ist anstelle des Lagenwachstums ein homoepitaktisches 3C-SiC-Inselwachstum zu beobachten. Die synthetisierten Schichten sind von vergleichsweise geringerer kristalliner Qualität, weisen aber trotz des Überangebots von Kohlenstoff während der Depositionsphase eine Si:C=1:1 Stöchiometrie auf.

Literaturverzeichnis

- [1] Cree Research, Silicon Carbide Substrates, Product Specifications 2005, <http://www.cree.com/ftp/pub/sicctlg-read-new.pdf>.
- [2] A. V. Hamza, M. Balooch, and M. Moalem, Growth of silicon carbide films via C₆₀ precursors, *Surf. Sci.* **317**(3), L1129–L1135 (1994).
- [3] A. R. Verma and P. Krishna, *Polymorphism and polytypism in crystals*, J.Wiley & Sons, Inc., New York-London-Sydney, 1966.
- [4] C. J. Schneer, Polymorphism in one dimension, *Acta Cryst.* **8**, 279–285 (1955).
- [5] A. Winkelmann, *Elektronenbeugungsmethoden zur Strukturanalyse epitaktischer Siliziumkarbidschichten*, Dissertation, Universität Jena, 2003.
- [6] L. S. Ramsdell, Studies on silicon carbide, *Am. Mineral.* **32**, 64–82 (1947).
- [7] F. C. Frank, The growth of carborundum; dislocations and polytypism, *Phil. Mag.* **42**, 1014–1021 (1951).
- [8] H. Jagodzinski, Der Symmetrieeinfluss auf den allgemeinen Lösungsansatz eindimensionaler Fehlordnungsprobleme, *Acta Cryst.* **7**, 17–25 (1954).
- [9] G. D. Price and J. Yeomans, The application of the ANNNI model to polytypic behaviour, *Acta Cryst. B* **40**, 448–454 (1984).
- [10] C. Cheng, R. J. Needs, and V. Heine, Inter-layer interactions and the origin of SiC polytypes, *J. Phys. C* **21**, 1049–1063 (1988).
- [11] S. Limpijumnong and W. R. L. Lambrecht, Total energy differences between SiC polytypes revisited, *Phys. Rev. B* **57**, 12017–12022 (1998).
- [12] E. Ising, Beitrag zur Theorie des Ferromagnetismus, *Zeit. f. Physik* **31**, 253–258 (1925).

- [13] P. G. Neudeck, *SiC Technology. In: The VLSI Handbook*, CRC Press, Inc., Boca Raton, FL, USA, 2000.
- [14] Y. Goldberg, M. E. Levinshtein, and S. L. Rumyantsev, *Silicon Carbide (SiC). In: Properties of Advanced Semiconductor Materials GaN, AlN, SiC, BN, SiC, SiGe*, John Wiley & Sons, Inc., New York, 2001.
- [15] J. W. Palmour, H. S. Kong, and R. F. Davis, Characterization of device parameters in high-temperature metal-oxide-semiconductor field-effect transistors in β -SiC thin films, *J. Appl. Phys.* **64**(4), 2168–2177 (1988).
- [16] D. J. Spry, P. Neudeck, R. Okojie, L.-Y. Chen, G. Beheim, R. Meredith, W. Mueller, and T. Ferrier, Electrical Operation of 6H-SiC MESFET at 500°C for 500 Hours in Air Ambient, *High Temperature Electronics Conference (HITEC)*, 2004.
- [17] L. Hoffmann, G. Ziegler, D. Theis, and C. Weyrich, Silicon carbide blue light emitting diodes with improved external quantum efficiency, *J. Appl. Phys.* **53**(10), 6962–6967 (1982).
- [18] Laser Components GmbH, SiC-UV-Detektoren, Technische Spezifikationen, <http://www.lasercomponents.co.uk/wwwuk/pdf/SiC.pdf>.
- [19] A. Agarwal, R. Singh, S.-H. Ryu, J. Richmond, C. Capell, S. Schwab, B. Moore, and J. Palmour, 600 V, 1-40 A, Schottky Diodes in SiC and Their Applications, www.cree.com/ftp/pub/CPWR-AN02.pdf, 2002.
- [20] S. G. Müller, R. C. Glass, H. M. Hobgood, V. F. Tsvetkov, M. Brady, D. Henshall, D. Malta, R. Singh, J. Palmour, and J. C. H. Carter, Progress in the industrial production of SiC substrates for semiconductor devices, *Mat. Sci. Eng. B* **80**(1-3), 327–331 (2001).
- [21] D. J. Larkin, SiC Dopant Incorporation Control Using Site-Competition CVD, *Phys. Stat. Sol. (b)* **202**(1), 305–320 (1997).
- [22] D. J. Larkin, P. G. Neudeck, J. A. Powell, and L. G. Matus, Site-competition epitaxy for superior silicon carbide electronics, *J. Appl. Phys.* **65**(13), 1659–1661 (1994).
- [23] T. Troffer, M. Schadt, T. Frank, H. Itoh, G. Pensl, J. Heindl, H. Strunk, and M. Maier, Doping of SiC by Implantation of Boron and Aluminum, *Phys. Stat. Sol. (a)* **162**(1), 277–298 (1997).

- [24] G. L. Harris, *Oxidation of SiC. In: Properties of Silicon Carbide*, INSPEC, the Institution of Electrical Engineers, London, UK, 1995.
- [25] ESK-SiC GmbH, SiC Schleifmittel, Technische Spezifikationen, <http://www.esk-sic.de/schleifmittel.htm>.
- [26] H. Morkoç, S. Strite, G. B. Gao, M. E. Lin, B. Sverdlov, and M. Burns, Large-band-gap SiC, III-V nitride, and II-VI ZnSe-based semiconductor device technologies, *J. Appl. Phys.* **76**(3), 1363–1398 (1994).
- [27] A. Bolz and M. Schaldach, Amorphous silicon carbide, *Artif. Organs* **14**, 151–160 (1991).
- [28] C. Harder, A. Rzany, and M. Schaldach, Coating of vascular stents with antithrombogenic amorphous silicon carbide, *Prog. Biomed. Res.* **4**, 71–77 (1999).
- [29] V. F. Tsvetkov, S. T. Allen, H. S. Kong, and C. H. Carter, Recent progress in SiC crystal growth, *Inst. Phys. Conf. Ser.* **142**, 17–22 (1996).
- [30] J. C. H. Carter, V. F. Tsvetkov, R. C. Glass, D. Henshall, M. Brady, S. G. Müller, O. Kordina, K. Irvine, J. A. Edmond, H.-S. Kong, R. Singh, S. T. Allen, and J. W. Palmour, Progress in SiC: from material growth to commercial device development, *Mat. Sci. Eng. B* **61-62**, 1–8 (1999).
- [31] E. G. Achseon, Production of Artificial Crystalline Carbonaceous Materials, United States Patent 492767 (28.02.1893).
- [32] E. G. Acheson, On carborundum, *Chem. News* **68**, 179 (1893).
- [33] J. A. Lely, Darstellung von Einkristallen von Siliziumcarbid und Beherrschung von Art und Menge der eingebauten Verunreinigungen, *Ber. Dt. Keram. Ges.* **32**, 229–231 (1955).
- [34] Y. M. Tairov and V. F. Tsvetkov, General principles of growing large-size single crystals of various silicon carbide polytypes, *J. Cryst. Growth* **52**, 146–150 (1981).
- [35] J. A. Powell and L. G. Matus, *Recent Developments in SiC. In: Amorphous and Crystalline Silicon Carbide and Related Materials*, Springer-Verlag, 1989.
- [36] Y. M. Tairov and V. F. Tsvetkov, Investigation of growth processes of ingots of silicon carbide single crystals, *J. Cryst. Growth* **43**(2), 209–212 (1978).

- [37] G. Ziegler, P. Lanig, D. Theis, and C. Weyrich, Single Crystal Growth of SiC Substrate Material for Blue Light Emitting Diodes, *IEEE Trans. Electron. Dev.* **30**, 277–281 (1983).
- [38] D. L. Barrett, R. G. Seidensticker, W. Gaida, and R. H. Hopkins, SiC boule growth by sublimation vapor transport, *J. Cryst. Growth* **109**(1-4), 17–23 (1991).
- [39] D. L. Barrett, J. P. McHugh, H. M. Hobgood, R. H. Hopkins, P. G. McMullin, and R. C. Clarke, Growth of large SiC single crystals, *J. Cryst. Growth* **128**(1-4), 358–362 (1993).
- [40] A. E. van Arkel and J. H. de Boer, Preparation of pure titanium, zirconium, hafnium and thorium metal, *Z. Anorg. Allgem. Chem.* **148**, 345–350 (1925).
- [41] J. Drowart, G. D. Maria, and M. G. Inghram, Thermodynamic Study of SiC Utilizing a Mass Spectrometer, *J. Chem. Phys.* **29**(5), 1015–1021 (1958).
- [42] G. Augustine, M. Hobgood, V. Balakrishna, G. Dunne, and R. Hopkins, Physical Vapor Transport Growth and Properties of SiC Monocrystals of 4H Polytype, *Phys. Stat. Sol. (b)* **202**(1), 137–148 (1997).
- [43] R. Glass, D. Henshall, V. Tsvetkov, and J. C.H. Carter, SiC Seeded Crystal Growth, *Phys. Stat. Sol. (b)* **202**(1), 149–162 (1997).
- [44] J. Heindl, H. P. Strunk, V. D. Heydemann, and G. Pensl, Micropipes: Hollow Tubes in Silicon Carbide, *Phys. Stat. Sol. (a)* **162**(1), 251–262 (1997).
- [45] J. Heindl, W. Dorsch, R. Eckstein, D. Hofmann, T. Marek, S. G. Müller, H. P. Strunk, and A. Winnacker, The kinetic growth model applied to micropipes in 6H-SiC, *Diam. Rel. Mat.* **6**(10), 1269–1271 (1997).
- [46] W. S. Yoo, S. Nishino, and H. Matsunami, *Polytype Change of Silicon Carbide at High Temperatures. In: Amorphous and Crystalline Silicon Carbide II*, Springer-Verlag, 1989.
- [47] U. Starke, J. Schardt, J. Bernhardt, M. Franke, and K. Heinz, Stacking Transformation from Hexagonal to Cubic SiC Induced by Surface Reconstruction: A Seed for Heterostructure Growth, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2107–2110 (1999).
- [48] K. Semmelroth, M. Krieger, G. Pensl, H. Nagasawa, R. Püsche, M. Hundhausen, L. Lely, M. Nerding, and H. P. Strunk, Growth of 3C-SiC Bulk Material by the Modified Lely Method, *Mat. Sci. Forum* **457-460**, 151–156 (2004).

- [49] L. Pizzagalli, G. Cicero, and A. Catellani, Theoretical investigations of a highly mismatched interface: SiC/Si(001), *Phys. Rev. B* **68**, 195302 (2003).
- [50] S. Nishino, J. A. Powell, and H. A. Will, Production of large-area single-crystal wafers of cubic SiC for semiconductor devices, *Appl. Phys. Lett.* **42**(5), 460–462 (1983).
- [51] W. J. Choyke, Z. C. Feng, and J. A. Powell, Low-temperature photoluminescence studies of chemical-vapor-deposition-grown 3C-SiC on Si, *J. Appl. Phys.* **64**(6), 3163–3175 (1988).
- [52] S. Nishino and J. Saraie, *Heteroepitaxial Growth of Cubic SiC on a Si Substrate Using the Si₂H₆-C₂H₂-H₂ System. In: Amorphous and Crystalline Silicon Carbide II*, Springer-Verlag, 1989.
- [53] I. Golecki, F. Reidinger, and J. Marti, Single-crystalline, epitaxial cubic SiC films grown on (100) Si at 750°C by chemical vapor deposition, *Appl. Phys. Lett.* **60**(14), 1703–1705 (1992).
- [54] G. Krötz, W. Legner, G. Müller, H. W. Grueninger, L. Snith, B. Leesec, A. Jones, and S. Rushworth, Structural and electronic characterization of β -SiC films on Si grown from mono-methylsilane precursors, *Mat. Sci. Eng. B* **29**(1-3), 154–159 (1995).
- [55] J.-H. Boo, K.-S. Yu, M. Lee, and Y. Kim, Deposition of cubic SiC films on silicon using dimethylisopropylsilane, *Appl. Phys. Lett.* **66**(25), 3486–3488 (1995).
- [56] A. J. Steckl, C. Yuan, J. P. Li, and M. J. Loboda, Growth of crystalline 3C-SiC on Si at reduced temperatures by chemical vapor deposition from silacyclobutane, *Appl. Phys. Lett.* **63**(24), 3347–3349 (1993).
- [57] C. Yuan, A. J. Steckl, and M. J. Loboda, Effect of carbonization on the growth of 3C-SiC on Si (111) by silacyclobutane, *Appl. Phys. Lett.* **64**(22), 3000–3002 (1994).
- [58] K.-W. Lee, K.-S. Yu, and Y. Kim, Heteroepitaxial growth of 3C-SiC on Si(001) without carbonization, *J. Cryst. Growth* **179**(1-2), 153–160 (1997).
- [59] K. Zekentes, R. Callec, K. Tsagaraki, B. Sagnes, G. Arnaud, J. Pascual, and J. Camassel, Carbonization of Si surfaces by solid source molecular beam epitaxy, *Mat. Sci. Eng. B* **29**(1-3), 138–141 (1995).

- [60] W. Attenberger, J. K. N. Lindener, B. Stritzker, V. Cimalla, T. Stauden, G. Ecke, G. Eichhorn, and J. Pezoldt, Ein Wachstumsmodell für die Karbonisierung von Siliziumsubstraten, 43. Internationales Wissenschaftliches Kolloquium, Technische Universität Ilmenau, 1998.
- [61] A. Fissel, B. Schröter, and W. Richter, Low-temperature growth of SiC thin films on Si and 6HSiC by solid-source molecular beam epitaxy, Appl. Phys. Lett. **66**(23), 3182–3184 (1995).
- [62] K. Pfennighaus, A. Fissel, U. Kaiser, M. Wendt, J. Kräußlich, G. Peiter, B. Schröter, and W. Richter, Investigation of growth conditions for epitaxial growth of SiC on Si in the solid-source molecular beam epitaxy, Mat. Sci. Eng. B **46**(1-3), 164–167 (1997).
- [63] A. Fissel, B. Schröter, J. Kräußlich, and W. Richter, Preparation of SiC films by solid state source evaporation, Thin Sol. Films **258**(1-2), 64–66 (1995).
- [64] H. W. Kroto, J. R. Heath, S. C. O'Brien, R. F. Curl, and R. E. Smalley, C₆₀: Buckminsterfullerene, Nature **318**, 162–163 (1985).
- [65] Nobelprize.org Official Website of the Nobel Foundation : The Nobel Prize in Chemistry 1996, <http://nobelprize.org/chemistry/laureates/1996/index.html>.
- [66] I. Lakatos, *Proofs and refutations*, Cambridge University Press, Cambridge, 1976.
- [67] B. Grünbaum and T. S. Motzkin, The number of hexagons and the simplicity of geodesics on certain polyhedra, Can. J. Math. **15**, 744–751 (1963).
- [68] H. W. Kroto, The stability of the fullerenes C_n, with n = 24, 28, 32, 36, 50, 60 and 70, Nature **329**, 529–531 (1987).
- [69] T. G. Schmalz, W. A. Seitz, D. J. Klein, and G. E. Hite, Elemental Carbon Cages, J. Am. Chem. Soc. **110**(4), 1113–1127 (1988).
- [70] R. D. Johnson, D. S. Bethune, and C. S. Yannoni, Fullerene Structure and Dynamics: A Magnetic Resonance Potpourri, **25**, 169–175 (1992).
- [71] P. W. Fowler and D. E. Manolopoulos, *An Atlas of Fullerenes*, Oxford University Press, 1995.

- [72] H. P. Lüthi and J. Almlöf, AB initio studies on the thermodynamic stability of the icosahedral C_{60} molecule “buckminsterfullerene”, Chem. Phys. Lett. **135**(4-5), 357–360 (1987).
- [73] R. C. Haddon, L. E. Brus, and K. Raghavachari, Electronic structure and bonding in icosahedral C_{60} , Chem. Phys. Lett. **125**(5-6), 459–464 (1986).
- [74] R. L. Disch and J. M. Schulman, On symmetrical clusters of carbon atoms: C_{60} , Chem. Phys. Lett. **125**(5-6), 465–466 (1986).
- [75] P. W. Fowler and J. Woolrich, π -Systems in three dimensions, Chem. Phys. Lett. **127**(1), 78–83 (1986).
- [76] S. Satpathy, Electronic structure of the truncated-icosahedral C_{60} cluster, **130**(6), 545–550 (1986).
- [77] J. A. Zimmerman, J. R. Eyler, S. B. H. Bach, and S. W. McElvany, Magic number carbon clusters: Ionization potentials and selective reactivity, J. Chem. Phys. **94**(5), 3556–3562 (1991).
- [78] L.-S. Wang, J. Conceicao, C. Jin, and R. E. Smalley, Threshold photodetachment of cold C_{60}^- , Chem. Phys. Lett. **182**(1), 5–11 (1991).
- [79] X. Yao, R. K. Workman, C. A. Peterson, D. Chen, and D. Sarid, The bonding nature of individual C_{60} molecules to Si(100) surfaces, Appl. Physics A **66**(S1), 107–111 (1998).
- [80] D. Chen and D. Sarid, Temperature effects of adsorption of C_{60} molecules on Si(111)-(7 x 7) surfaces, Phys. Rev. B **49**(11), 7612–7619 (1994).
- [81] M. R. C. Hunt, Temperature dependence of the electronic and vibrational excitations of C_{60} adsorbed on Si (100) - 2x1, J. Phys. C **8**, L229–L235 (1996).
- [82] M. Balooch and A. V. Hamza, Observation of C_{60} cage opening on Si(111)-(7x7), Appl. Phys. Lett. **63**(2), 150–152 (1993).
- [83] A. V. Hamza and M. Balooch, On the Selective Growth of SiC Films via C_{60} Precursors, Proceedings of the Symposium on Recent Advances in the Chemistry and Physics of Fullerenes and related Materials, Electrochem. Soc. **95-10**, 1360–1364 (1995).

- [84] A. V. Hamza and M. Balooch, Growth of Silicon Carbide on Silicon via Reaction of Sublimed Fullerenes and Silicon, Proceedings of the Thirteenth International Conference on Chemical Vapor Deposition, Electrochem. Soc. **96-5**, 418–422 (1996).
- [85] A. V. Hamza and M. Balooch, The Dynamics of the Interaction of Fullerenes with Si and SiO₂ and Selective Growth of SiC, Proceedings of the International Winterschool on Electronic Properties of Novel Materials, World Scientific, Singapore, 595–599 (1996).
- [86] S. Henke, *Epitaktisches Wachstum von Fullerschichten*, Dissertation, Universität Augsburg, 1995.
- [87] M. Philipp, *Wachstum dünner Siliziumkarbidschichten durch Karbonisierung von Silizium mit Fullerenen*, Diplomarbeit, Universität Augsburg, 1996.
- [88] J. Müller, *Herstellung und Charakterisierung von Siliziumkarbidschichten auf Isolatoren durch Fullerenkarbonisierung*, Diplomarbeit, Universität Augsburg, 1997.
- [89] S. Schreiber, *Synthese von SiC-Schichten auf (001)-Silizium-Substraten durch C₆₀-Karbonisierung bei optionaler Silizium-Kodeposition und Schichtcharakterisierung für verschiedene Prozessparameter*, Diplomarbeit, Universität Augsburg, 1999.
- [90] M. D. Seta, N. Tomozeiu, D. Sanvitto, and F. Evangelisti, SiC formation on Si(100) via C₆₀ precursors, Surf. Sci. **460**(1-3), 203–213 (2000).
- [91] L. C. Feldman and J. W. Mayer, *Fundamentals of Surface and Thin Film Analysis*, North-Holland, Elsevier, New York, 1986.
- [92] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, and U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids*, Pergamon Press, New York, 1985.
- [93] L. R. Doolittle, A semiautomatic algorithm for rutherford backscattering analysis, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **15**(1-6), 227–231 (1986).
- [94] L. R. Doolittle, Algorithms for the rapid simulation of Rutherford backscattering spectra, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **9**(3), 344–351 (1985).
- [95] W. K. Chu, J. W. Mayer, and M.-A. Nicolet, *Backscattering Spectrometry*, Academic Press, New York, 1978.

- [96] G. Schatz and A. Weidinger, *Nukleare Festkörperphysik*, Teubner, Stuttgart, 1992.
- [97] W. Assmann, H. Huber, C. Steinhausen, M. Dobler, H. Glückler, and A. Weidinger, Elastic recoil detection analysis with heavy ions, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **89**(1-4), 131–139 (1994).
- [98] W. Assmann, P. Hartung, H. Huber, P. Staat, H. Steffens, and C. Steinhausen, Setup for materials analysis with heavy ion beams at the Munich MP tandem, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **85**(1-4), 726–731 (1994).
- [99] W. Assmann, Ionization chambers for materials analysis with heavy ion beams, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **64**(1-4), 267–271 (1992).
- [100] A. Bergmaier, G. Dollinger, and C. M. Frey, Quantitative elastic recoil detection, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **99**(1-4), 488–490 (1995).
- [101] W. H. Bragg and W. L. Bragg, The reflection of X-rays by crystals, Proc. Roy. Soc. London A **88**, 428–438 (1913).
- [102] H. P. Klug and L. E. Alexander, *X-ray diffraction*, John Wiley & Sons, New York, 1974.
- [103] B. D. Cullity, *Elements of X-ray diffraction*, Addison-Wesley, London, Amsterdam, 1978.
- [104] J. P. Eberhart, *Structural and Chemical Analysis of Materials*, John Wiley & Sons, Chichester, 1991.
- [105] W. H. Bragg, Application of the Ionisation Spectrometer to the Determination of the Structure of Minute Crystals, Proc. Phys. Soc. London **33**, 222–224 (1921).
- [106] J. C. M. Brentano, An X-ray goniometer using beams of large aperture for photographically recording crystal-powder reflections, Proc. Phys. Soc. London **49**, 61–77 (1937).
- [107] H. Seemann, A focussing x-ray spectroscopic configuration for crystal powder, Ann. Phys. **59**, 455–464 (1919).
- [108] H. Bohlin, A new device for x-ray-crystallographic tests of crystal powder, Ann. Phys. **61**, 421–439 (1920).

- [109] D. Schweitzer, *Röntgenographische Untersuchungen zur Struktur von laserablattierten $YBa_2Cu_3O_{7-8}$ -Schichten*, Diplomarbeit, Universität Augsburg, 1995.
- [110] M. Schuster and H. Göbel, Parallel-beam coupling into channel-cut monochromators using curved graded multilayers, *J. Phys. D* **28**, A270–A275 (1995).
- [111] S. Six, *Synthese epitaktischer Aluminiumnitridschichten mittels ionenstrahl-gestützter Laserablation*, Dissertation, Universität Augsburg, 2001.
- [112] W. Braun, *Applied RHEED*, Springer Tracts in Modern Physics 154, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1999.
- [113] J. E. Mahan, K. M. Geib, G. Y. Robinson, and R. G. Long, A review of the geometrical fundamentals of reflection high-energy electron diffraction with application to silicon surfaces, *J. Vac. Sci. Technol. A* **8**(5), 3692–3700 (1990).
- [114] B. A. Joyce, J. H. Neave, P. J. Dobson, and P. K. Larsen, Analysis of reflection high-energy electron-diffraction data from reconstructed semiconductor surfaces, *Phys. Rev. B* **29**(2-15), 814–819 (1984).
- [115] M. G. Lagally, D. E. Savage, and M. C. Tringides, *Diffraction from disordered Surfaces: An Overview. In: Reflection High Energy Electron Diffraction and Reflection Electron Imaging of Surfaces*, Plenum, London, 1988.
- [116] D. E. Savage and M. G. Lagally, *Quantitative Studies of the Growth of Metals on GaAs (110) using RHEED. In: Reflection High Energy Electron Diffraction and Reflection Electron Imaging of Surfaces*, Plenum, London, 1988.
- [117] J. L. Beeby, *Surface Structural Determination using RHEED. In: Reflection High Energy Electron Diffraction and Reflection Electron Imaging of Surfaces*, Plenum, London, 1988.
- [118] M. H. Loretto, *Electron Beam Analysis of Materials, Second Edition*, Chapman & Hall, London, 1994.
- [119] S. N. Magonov and M.-H. Whangbo, *Surface Analysis with STM and AFM*, VCH, Weinheim, 1996.
- [120] J. P. den Hartok, *Mechanische Schwingungen*, Springer-Verlag, Berlin, Second Edition, 1952.

- [121] Y. Martin, C. C. Williams, and H. K. Wickramasinghe, Atomic force microscope – force mapping and profiling on a sub 100-Å scale, *J. Appl. Phys.* **61**(10), 4723–4729 (1987).
- [122] McClelland, *Atomic Force Microscopy: General Principles and New Implementation, vol. 6B of Review of Progress in Quantitative Nondestructive Evaluation*, Plenum Press, New York, 1987.
- [123] J. D. Kiely and D. A. Bonnell, Quantification of topographic structure by scanning probe microscopy, *J. Vac. Sci. Technol. A* **15**(4), 1483–1493 (1997).
- [124] L. Reimer, *Transmission Electron Microscopy*, Springer-Verlag, Berlin, 1984.
- [125] B. Fultz and J. M. Howe, *Transmission Electron Microscopy and Diffractometry of Materials*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2001.
- [126] C. Long, S. A. Ustin, and W. Ho, Structural defects in 3C-SiC grown on Si by supersonic jet epitaxy, *J. Appl. Phys.* **86**(5), 2509–2515 (1999).
- [127] M. Kitabatake, SiC/Si heteroepitaxial growth, *Thin Sol. Films* **369**(1-2), 257–264 (2000).
- [128] S. R. Nutt, D. J. Smith, H. J. Kim, and R. F. Davis, Interface structures in beta-silicon carbide thin films, *Appl. Phys. Lett.* **50**(4), 203–205 (1987).
- [129] J.-S. Luo and W.-T. Lin, Localized epitaxial growth of hexagonal and cubic SiC films on Si by vacuum annealing, *Appl. Phys. Lett.* **69**(7), 916–918 (1996).
- [130] W. Attenberger, J. K. N. Lindner, and B. Stritzker, Patentschrift, Ap. Nr. 60/328,759, US Patent and Trademark Office, 2001.
- [131] W. Attenberger, *Untersuchungen der inneren Grenzfläche des Si/SiC-Systems*, Dissertation, Universität Augsburg, 2002.
- [132] M. Dayan, The β -SiC(100) surface studied by low energy electron diffraction, Auger electron spectroscopy, and electron energy loss spectra, *J. Vac. Sci. Technol. A* **4**(1), 38–45 (1986).
- [133] S. A. Shevlin and A. J. Fisher, Modeling of the β -SiC(001) (3×2) surface reconstruction, *Appl. Surf. Sci.* **162-163**, 94–99 (2000).
- [134] M. Uchida and M. Kitabatake, Epitaxial growth of 3C-SiC by low-pressure chemical vapor deposition on a surface-structure-controlled molecular beam epitaxy layer, *Thin Sol. Films* **335**(1-2), 32–36 (1998).

- [135] M. Kitabatake and J. E. Greene, Surface-Structure-Controlled Heteroepitaxial Growth of 3C-SiC(001) 3×2 on Si(001): Simulations and Experiments, Jpn. J. Appl. Phys. **35**, 5261–5273 (1996).
- [136] ICDD, Powder Diffraction File, Joint Committee on Powder Diffraction Standards, JCPDS.
- [137] M. E. Levinshtein, S. L. Rumyantsev, and M. S. Shur, *Properties of Advanced Semiconductor Materials: GaN, AlN, InN, BN, SiC, and SiGe*, Wiley, New York, 2001.

Anhang

A.1 SiC-Gitterkonstanten

SiC-Polytyp	Kristallstruktur	Gitterparameter
3C-SiC	kubisch	$a=b=c=4,3596 \text{ \AA}$
2H-SiC	hexagonal	$a=b=3,073 \text{ \AA}$, $c=5,031 \text{ \AA}$
4H-SiC	hexagonal	$a=b=3,073 \text{ \AA}$, $c=10,061 \text{ \AA}$
6H-SiC	hexagonal	$a=b=3,073 \text{ \AA}$, $c=15,08 \text{ \AA}$

Tab. 7.1: Gitterkonstanten der wichtigsten SiC-Polytypen mit Daten aus [136, 137]

A.2 Reinigung im Wasserstoffplasma

Parameter	Substrat 1	Substrat 2
Mikrowellenleistung [W]	1100	1100
Mikrowellenfrequenz [GHz]	2,45	2,45
Wasserstofffluss [sccm]	200	400
Probentemperatur [°C]	600	450
Behandlungsdauer [min]	30	15
Prozessdruck [mbar]	30	30

Tab. 7.2: Parameter, die zur Reinigung der 3C-SiC(001)-Pseudosubstrate im Wasserstoffplasma verwendet wurden.

Publikationsliste des Autors

K. Volz, S. Schreiber, M. Zeitler, B. Rauschenbach, B. Stritzker, W. Ensinger, Structural investigations of silicon carbide films formed by fullerene carbonization of silicon, Surf. Coat. Tech. **122**, 101-107 (1999)

K. Volz, S. Schreiber, J. W. Gerlach, W. Reiber, B. Rauschenbach, B. Stritzker, W. Assmann, W. Ensinger, Heteroepitaxial growth of 3C-SiC on (100) silicon by C₆₀ and Si molecular beam epitaxy, Mat. Sci. Eng. A **289**, 255-264 (2000)

A. Janotta, R. Janssen, M. Schmidt, T. Graf, L. Görgens, C. Hammerl, S. Schreiber, G. Dollinger, A. Bergmaier, B. Stritzker, M. Stutzmann, Dependence of the doping efficiency on material composition in n-type a-SiO_x:H, J. Non-Cryst. Solids **299-302**, 579-584 (2002)

G. J. Sibona, S. Schreiber, R. H. W. Hoppe, B. Stritzker, A. Revnic, Numerical simulation of the production process of layered materials, Mat. Sci. Semicon. Proc. **6**, 71-76 (2003)

A. Janotta, R. Janssen, M. Schmidt, T. Graf, M. Stutzmann, L. Görgens, A. Bergmaier, G. Dollinger, C. Hammerl, S. Schreiber, B. Stritzker, Doping and its efficiency in a-SiO_x:H, Phys. Rev. B **69** 115206 (2004)

S. Schreiber, B. Stritzker, G. Sibona, D. Schweitzer, R. H. W. Hoppe, Molecular Dynamics Simulation, The wonderful World of Numerical Simulation, Springer VideoMath PAL/VHS (2005)

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Insbesondere danke ich

Herrn Prof. Dr. Bernd Stritzker, der mir ermöglichte, mich an seinem Lehrstuhl mit diesem interessanten Thema auseinanderzusetzen. Die von ihm geschaffenen ausgesprochen guten Arbeitsbedingungen und die kollegiale Atmosphäre am Lehrstuhl ließen selbst schwierige Aufgaben leicht von der Hand gehen.

Herrn Dr. habil. Jörg Lindner und Herrn Dipl. Phys. Maik Häberlen für die Bereitstellung der 3C-SiC-Pseudosubstrate und die Anfertigung sämtlicher TEM-Aufnahmen, die zu dieser Arbeit beigetragen haben. Die Zusammenarbeit mit ihnen hat einen großen Teil der hier dargestellten Untersuchungen erst möglich gemacht.

Frau Dr. Hadwig Sternschulte für ihre stete Hilfsbereitschaft und die zahlreichen interessanten Diskussionen zu Problemstellungen aller Art. Für das Korrekturlesen der vorliegenden Arbeit, auch zu später Stunde, bin ich ihr zu besonderem Dank verpflichtet.

Herrn Dr. Götz Thorwarth für die Durchführung und Auswertung der ERDA-Messungen.

Herrn Dipl. Phys. Thomas Bauer und Herrn Dr. Andreas Heinrich für die Anfertigung der REM-Bilder.

Herrn Dr. habil. Helmut Karl, der für meine Fragen zur RHEED-Analytik immer ein offenes Ohr hatte.

meinen Zimmerkollegen Herrn Dr. Claus Hammerl, Herrn Dipl. Phys. Frank Hörmann, Herrn Dipl. Phys. Thomas Bauer und Herrn Dipl. Phys. Stephan Leitenmeier für die freundschaftliche Arbeitsatmosphäre und die vielen unvergesslichen Momente.

Lebenslauf

Persönliche Daten:

Name:	Sascha Schreiber
Geburtstag:	12. Februar 1974
Geburtsort:	Schrobenhausen
Staatsangehörigkeit:	deutsch

Schulbildung:	1980 - 1984	Grundschule Schrobenhausen
	1984 - 1993	Gymnasium Schrobenhausen
		Abschluss: Allgemeine Hochschulreife

Hochschulausbildung:	1993 - 1999	Studium der Physik an der Universität Augsburg Abschluss: Diplom-Physiker (Univ.)
	1999 - 2006	Promotion an der Universität Augsburg Abschluss: Dr. rer. nat.